

# **Theoretische Untersuchungen und experimentelle Methoden zur Realisierung von Volumenzonenplatten für die Röntgenmikroskopie**

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium  
im Fach Physik

eingereicht an der  
Mathematisch-Wissenschaftlichen Fakultät I  
Humboldt-Universität zu Berlin

von  
**Dipl.-Phys. Stephan Werner**

01.11.1980, Riesa

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:  
Prof. Dr. Dr. h.c. Christoph Marksches

Dekan der Mathematisch-Wissenschaftlichen Fakultät I:  
Prof. Dr. Andreas Herrmann

Gutachter:

1. PD Dr. G. Schneider
2. Prof. Dr. O. Benson
3. Prof. Dr. G. Schmahl

**eingereicht am:** 06.05.2010

**Tag der mündlichen Prüfung:** 27.10.2010





## Zusammenfassung

Gegenstand dieser Arbeit ist die beugungstheoretische Untersuchung und Herstellung von diffraktiven Röntgenoptiken mit hohen Aspektverhältnissen – so genannten Volumenzonenplatten – für hochauflösende Röntgenmikroskopie im Photonenenergiebereich von 0.1 - 10 keV.

Das Auflösungsvermögen eines Röntgenmikroskopes ist im Wesentlichen durch die numerische Apertur des verwendeten Zonenplattenobjektives bestimmt. Die Apertur hängt dabei von der verwendeten Beugungsordnung und der äußeren Zonenbreite der Röntgenoptik ab. Daraus resultierend wird eine Auflösungssteigerung nur durch eine Verkleinerung der minimalen Strukturbreiten der beugenden Zonen oder durch die Verwendung von hohen Beugungsordnungen erzielt. Neben einem möglichst großem Auflösungsvermögen ist ein hinreichend hoher Beugungswirkungsgrad die Grundvoraussetzung für röntgenmikroskopische Abbildungen. Entgegen den klassischen Vorhersagen nach der Theorie dünner Gitter zeigen die elektrodynamischen Rechnungen, daß der Einsatz von geneigten Zonenplattenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen zu einem signifikanten Anstieg der Beugungseffizienz in ausgewählten hohen Beugungsordnungen führt. Dabei steigt der Neigungswinkel der beugenden Zonenstrukturen mit zunehmenden Zonenplattenradius an. In der Praxis können derartige dreidimensionale, geneigte Nanostrukturen aufgrund der extremen technologischen Anforderungen bei der Nanostrukturierung nur durch eine Approximierung des Neigungswinkels realisiert werden.

Zur Herstellung von Zonenplatten mit hohen Aspektverhältnissen wird in dieser Arbeit ein sog. Stack-Prozeß eingeführt. Hierbei werden dreidimensionale Zonenstrukturen durch präzise Überlagerung von einzelnen Zonenplattenschichten aufgebaut. Um den Neigungswinkel der Multi-Lagen-Zonenstrukturen anzunähern, werden dabei die Zonenradien innerhalb der Einzel-Zonenplatten mit jeder Zonenplattenschicht verringert. Der Stack-Prozeß setzt die Entwicklung neuer Nanotechnologie im Rahmen der Zonenplattenherstellung voraus. In einem Overlay-Lithographie-Verfahren müssen die Zonenplattenlagen exakt an den darunterliegenden Strukturen ausgerichtet werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden dazu geeignete, nanostrukturierte Marken für eine möglichst präzise Schreibfeldkalibrierung bei der Elektronenstrahlolithographie eingesetzt. Des weiteren wurde ein Prozeß zur Planarisierung der Zonenstrukturen basierend auf chemisch mechanischem Polieren, ein Verfahren zur Härtung des verwendeten Polymers beruhend auf Strahlungsvernetzung mit Elektronen und die nachträgliche Herstellung der Siliziumnitrid-Trägermembranen mittels anisotropen, nass-chemischen KOH-Ätzen entwickelt. Die erfolgreiche Realisierung dieser Nanostrukturierungstechnologien führt in der vorliegenden Arbeit erstmalig zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten mit minimalen Zonenbreiten bis zu 25 nm.

Um den Einfluß von Prozessierungsfehlern auf die Beugungseigenschaften von Multi-Lagen-Zonenplatten zu ermitteln, werden theoretische Berechnungen der Beugungseffizienz von Zonenplattenstrukturen mit geneigten sowie ungeneigten Zonen mit Hilfe der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Rechnungen liefern Toleranzbereiche, in denen die untersuchten Parameter die erzielbare Beugungseffizienz nur schwach beeinflussen. Um einen Wirkungsgradverlust bei der Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten zu vermeiden, sind Overlay-Fehler und Strich-Lücke-Genauigkeiten  $\leq 15\%$  der äußeren

Zonenperiode erforderlich. Zusätzlich dürfen die Einzel-Schichthöhen nicht mehr als 20% vom Idealwert abweichen. Die ermittelten Fehlerbereiche müssen im Rahmen der Nanostrukturierung von übereinandergelagerten Volumenzonenplatten berücksichtigt werden.

Neben der Möglichkeit zur Herstellung von geneigten Zonenplattenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen für die Erhöhung des Beugungswirkungsgrades in hohen Beugungsordnungen bietet der entwickelte Prozeß eine weitere wichtige Anwendung. Verzichtet man auf eine Neigung der Strukturen wird das erzielbare Aspektverhältnis der parallel zur optischen Achse angeordneten Zonen nur durch die Anzahl der übereinandergelagerten Einzel-Zonenplatten begrenzt. Dies ermöglicht die Herstellung von hochauflösenden Zonenplattenobjektiven mit sehr großen Zonenhöhen, woraus eine signifikante Steigerung der Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung bei Röntgenenergien im multi-keV-Bereich resultiert. Zur Verdeutlichung dieses Effektes werden für die hergestellten Multi-Lagen-Zonenplatten Wirkungsgradmessungen bei verschiedenen Photonenenergien durchgeführt und mit experimentellen Werten von Einzel-Lagen-Zonenplatten verglichen. Die Untersuchungen liefern für Doppel-Lagen-Zonenplatten mit 40 nm minimaler Zonenbreite maximale Beugungseffizienzen der ersten Beugungsordnung von 20.7% bei 680 eV Photonenenergie. Dies entspricht ca. 80% der theoretisch erzielbaren Werte von 25.1% bei dieser Röntgenenergie. Im Vergleich dazu ergeben Messungen von 40 nm Einzel-Lagen-Zonenplatten bei diesen Energie maximale Wirkungsgrade von 11.0%. Die Abweichungen der experimentellen zu den theoretischen Effizienzwerten der Multi-Lagen-Zonenplatten sind durch einen Versatz zwischen den Zonenplattenlagen, Abweichungen im Strich-Lücke-Verhältnis und Polymerrückständen zwischen den äußeren Zonenstrukturen begründet.

Aufbauend auf der in dieser Arbeit gezeigten, prinzipiellen Realisierbarkeit von Multi-Lagen- und Volumenzonenplatten ergibt sich zukünftig für röntgenmikroskopische Abbildungen das Potential gesteigerter Auflösungsvermögen im sub-10 nm-Bereich für weiche Röntgenstrahlung, sowie der Fokussierung auf ca. 20 nm im harten Röntgenbereich bei gleichzeitig hohen Beugungseffizienzen der Röntgenoptiken. Von diesen Entwicklungen profitieren sowohl die Vollfeld- als auch die Rasterröntgenmikroskopie. In einem Vollfeldmikroskop wird direkt die Strahldosis reduziert, was einen großen Vorteil für tomographische Untersuchungen im Bereich der Lebenswissenschaften, u. a. von Zellen, ergibt. Beim Einsatz in Rastermikroskopen bieten diese Optiken die Möglichkeit zur Erstellung von hochauflösenden Elementverteilungen mittels Röntgenfluoreszenz.

## Abstract

Subject of this thesis is the theoretical investigation and the fabrication of diffractive X-ray optics with high aspect ratios - so-called volume zone plates - for high resolution X-ray microscopy in the soft and hard X-ray region.

The spatial resolution of an X-ray microscope is defined by the numerical aperture of the zone plate objective used for imaging. Since the aperture scales with the ratio of the outermost zone width and the used diffraction order, an increased resolution can only be obtained by either reducing the minimum structure width of the diffracting zones or imaging at high orders of diffraction. Besides a preferably high spatial resolution a sufficiently high diffraction efficiency is a basic requirement for X-ray microscopy. Against the predictions of the classical theory for thin gratings electro-dynamical calculations show a significant enhancement in the diffraction efficiency of high diffraction orders by tilting the zone structures of a high aspect ratio zone plate. Ideally the tilt angle of the diffractive zones varies and rises with the increasing zone plate radius. Practically such three-dimensional tilted nanostructures can only be realized by approximating the tilt angle due to the extremely high nanostructuring requirements.

For the nanofabrication of high aspect ratio zone plate optics a so-called stack process based on superimposing single zone plate layers on top of each other with high precision is introduced in this thesis. To manufacture tilted zone structures the tilt angle is thereby approximated by reducing the zone radii in the single zone plate layers. For the stack process several nanostructuring techniques have to be developed.

In an overlay lithography process the zone plate layers have to be well-aligned to the beneath lying nanostructures. In this thesis suitable, nanostructured alignment marks are used for a high precision write field adjustment during the electron lithography. Additionally a planarisation process based on chemical mechanical polishing, a technique for hardening the used polymer by electron cross-linking and the subsequently fabrication of the silicon nitride support membrane by anisotropic wet chemical etching of the silicon substrate in KOH were developed. The successful realization of these process steps allows for the first time the fabrication of multilayer zone plates with minimum zone widths down to 25 nm.

To determine the influence of fabrication errors on the diffraction properties of volume zone plates theoretical investigations on the diffraction efficiency of tilted and untilted zone structures are performed by rigorous coupled wave theory. The result of this calculations yield in tolerance ranges for the chosen fabrication errors within the efficiency is insignificantly affected. To avoid an efficiency lost due to fabrication errors in multilayer zone plates the overlay error and the deviation in the line-to-space ratio have to be smaller than 15% of the outermost zone period. In addition the single layer height should not vary more than 20% from the ideal value. The determined error ranges have to be considered during the nanofabrication of stacked volume zone plates.

Additionally to the possibility of manufacturing tilted zone structures with high aspect ratios to increase the efficiency in high orders of diffraction, the stack process offer another important application. If the zone plate layers are stacked without approximating a tilt angle the achievable aspect ratio of the nanostructures is only limited by the number of zone plate layers superimposed on top of each other.

This offers the opportunity to fabricate zone plate optics with very high straight zones, which results in a significantly increased diffraction efficiency in the first diffraction order at high photon energies. To point up this effect the first order diffraction efficiency of fabricated multilayer zone plates is measured at different photon energies and compared with experimental values determined from single layer zone plates. The measured first order efficiency of dual layer zone plates with 40 nm outermost zone widths is 20.7% and 12.6% at 680 and 800 eV photon energy. This corresponds to approximately 80% of the theoretical achievable value of 25.1% and 15.8% at these energies. In comparison, measurements of polished 40 nm single layer zone plates at the same X-ray energies result in maximum efficiencies of 11.0% and 5.1%. The discrepancy between the experimental and the theoretical efficiency values of the multilayer zone plates is caused by a displacement between the zone plate layers, deviations in the line-to-space ratio and polymer residues in between the outermost zones.

Based on the principle feasibility of multilayer and volume zone plates, which is shown in this thesis, in future these optics have the potential for an increased spatial resolution in the sub-10 nm range for soft X-ray microscopy and for focusing hard X-rays down to 20 nm in combination with high diffraction efficiencies. From this developments benefit full-field X-ray microscopy as well as scanning X-ray microscopy. For full-field microscopy the radiation dose is directly reduced, which is necessary for tomographic applications from life science, amongst others investigations on cells. In a scanning microscope these optics give the possibility to determine elemental distributions by X-ray fluorescence.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Optiken für die Röntgenmikroskopie</b>	<b>5</b>
2.1	Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie . . . . .	5
2.2	Refraktive Röntgenoptiken . . . . .	6
2.3	Reflektive Röntgenoptiken . . . . .	8
2.3.1	Totalreflexionsspiegel . . . . .	9
2.3.2	Multischichtspiegel . . . . .	10
2.3.3	Röntgenkapillaren . . . . .	11
2.3.4	Wellenleiter für Röntgenstrahlung . . . . .	13
2.4	Diffraktive Röntgenoptiken . . . . .	14
2.4.1	Fresnelsche Zonenplatten . . . . .	15
2.4.2	Multilayer-Laue-Linsen . . . . .	18
2.4.3	Photonensiebe . . . . .	20
2.5	Vergleich der Röntgenoptiken . . . . .	21
2.6	Volumenzonenplatten für Ortsauflösungen unter 10 nm . . . . .	22
<b>3</b>	<b>Zonenplatten basierte Röntgenmikroskopie</b>	<b>25</b>
3.1	Röntgenoptische Konzepte für die mikroskopische Abbildung . . . . .	25
3.2	Das Vollfeld-Röntgenmikroskop am BESSY II Elektronenspeicherring . .	27
3.2.1	Aufbau des BESSY II-TXM . . . . .	27
3.2.2	Demonstration der röntgenmikroskopischen Abbildung in drit- ter Beugungsordnung . . . . .	29
3.2.3	Anwendungen der Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung .	33
<b>4</b>	<b>Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten</b>	<b>39</b>
4.1	Theorie gekoppelter Wellen an Zonenplattenstrukturen . . . . .	40
4.1.1	Matrixlösung der vereinfachten Wellengleichung . . . . .	45
4.1.2	Rigorese Theorie gekoppelter Wellen . . . . .	46
4.2	Volumenbeugungseffekte in Zonenplatten . . . . .	51
4.3	Einfluß von Herstellungsfehlern auf den Wirkungsgrad in hohen Ord- nungen . . . . .	54
4.3.1	Einfluß von Abweichungen bei der Zonenpositionierung . . . . .	57
4.3.2	Auswirkungen von Fehlern in der Einzel-Schichthöhe . . . . .	59
4.3.3	Effekte durch Ungenauigkeiten im Strich-Lücke-Verhältnis . . . .	60
4.4	Hocheffiziente Zonenplatten für den multi-keV-Röntgenbereich . . . .	63

<b>5</b>	<b>Nanostrukturierung von Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie</b>	<b>71</b>
5.1	Tri-Level-Prozeß zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplatten . .	71
5.1.1	Das Schicht-System . . . . .	72
5.1.2	Elektronenstrahlolithographie . . . . .	74
5.1.3	Strukturübertragung durch reaktives Ionenätzen . . . . .	76
5.1.4	Galvanisieren von Nickel-Zonenplatten . . . . .	78
5.2	Verfahren zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten . . . . .	82
5.2.1	Chemisch mechanisches Polieren von Zonenplatten aus Nickel .	84
5.2.2	Strahlungsvernetzen von Polymeren mit Elektronen . . . . .	89
5.2.3	Overlay-Elektronenstrahlolithographie . . . . .	91
5.2.4	Nachträgliche Herstellung von Träger-Membranen für Multi-Lagen-Zonenplatten . . . . .	96
<b>6</b>	<b>Herstellung und Charakterisierung von Multi-Lagen-Zonenplatten</b>	<b>101</b>
6.1	Prozessierung von übereinandergelagerten linearen Gitterstrukturen . .	101
6.2	Hergestellte Multi-Lagen-Zonenplatten . . . . .	104
6.3	Wirkungsgradmessungen von übereinandergelagerten Zonenplatten . .	114
6.3.1	Messaufbau zur Bestimmung der Beugungseffizienz . . . . .	114
6.3.2	Auswertung und Messergebnisse . . . . .	116
6.4	Neuer Elektronenstrahlschreiber für Nanometer-Präzisionslithographie am HZB . . . . .	125
<b>7</b>	<b>Diskussion und Ausblick</b>	<b>129</b>

# 1 Einleitung

Für viele wissenschaftliche Untersuchungen sind mikroskopische Abbildungen unerlässlich. Eine große Anzahl an Fragestellungen aus den Bereichen der Physik, Biologie, Medizin und Materialwissenschaften lassen sich nur mittels den damit gewonnenen strukturellen Informationen lösen. Dabei ist das räumliche Auflösungsvermögen eines beugungsbegrenzt abbildenden Mikroskopes durch die numerische Apertur des Objektives und die verwendete Wellenlänge begrenzt. Somit ergibt sich für konventionelle Lichtmikroskope eine Auflösungsgrenze von ca. 200 nm. Durch die Verwendung von hochenergetischen Elektronen mit kurzen deBroglie-Wellenlängen in Transmissionselektronenmikroskopen (TEM) werden Auflösungen im 0.1 nm Bereich für Festkörperproben bzw. im Bereich von einigen Nanometern für biologische Proben erreicht. Aufgrund der inelastischen Streuung von Elektronen beim Durchgang durch Materie ist die Dicke der zu untersuchenden Proben dabei jedoch auf wenige 100 nm begrenzt. Zusätzlich schränken Strahlenschäden die erzielbare Auflösung bei biologischen Proben stark ein.

Eine Ergänzung der bisherigen mikroskopischen Methoden bietet die Abbildung mit Röntgenstrahlung. Dabei wird ein hohes Auflösungsvermögen aufgrund von kurzen Wellenlängen mit einem hohen Durchdringungsvermögen der Röntgenphotonen durch Materie verbunden. Für die mikroskopische Abbildung mit Röntgenstrahlung werden grundsätzlich zwei Verfahren unterschieden: die Linsenlose und die Abbildung mit Röntgenoptiken. In den letzten Jahren wurde eine Vielzahl an Konzepten zur Linsenlosen Abbildung mit Röntgenstrahlung entwickelt [1, 9, 28, 50, 91, 111, 113, 120, 123]. Mit Hilfe von kohärenter Röntgenbeugung und holographischen Verfahren wurden Strukturgrößen im Bereich von 20 – 70 nm abgebildet [1, 28, 113, 123]. Die Linsenlosen Abbildungsverfahren erfordern Röntgenquellen mit sehr hoher Kohärenz und Brillanz. Selbst an moderne Undulatorquellen an Elektronenspeicherringen beträgt der Kohärenzgrad nur ca. 1%, was im praktischen Einsatz zu langen Belichtungszeiten führt. Zusätzlich werden diese Methoden durch Probleme bei der Wiedergewinnung der Phaseninformationen der gestreuten Röntgenstrahlen limitiert. Dies führt dazu, daß nur isolierte Objekte ohne Streuung außerhalb des Objektbereiches abgebildet werden können, was in der Praxis bei der Untersuchung komplexer Proben nicht gewährleistet ist.

Als Linsen-basierte Methode für hochauflösende Abbildungen mit Röntgenstrahlung im weichen und harten Röntgenbereich wird die Röntgenmikroskopie mit geeigneten Optiken eingesetzt. Das erzielbare Auflösungsvermögen eines Röntgenmikroskopes wird durch die numerische Apertur  $NA$  des zur Abbildung genutzten Objektives bestimmt. Die Herstellung geeigneter Röntgenoptiken erweist sich dabei als technologisch schwierig. Brechungslinsen sind für Photonenenergien  $< 10$  keV sehr

## 1 Einleitung

lichtschwach, da die Brechzahlen aller Materialien nahezu eins und gleichzeitig die Absorption im Linsenmaterial sehr hoch ist. Die Herstellung von reflektiven Optiken hingegen ist technisch durch zu hohe Anforderungen an Formgenauigkeit und Oberflächenbeschaffenheit limitiert. Daher werden in hochauflösenden Röntgenmikroskopen meist Beugungsoptiken in Form von Fresnelschen Zonenplatten eingesetzt. Die numerische Apertur von Zonenplattenobjektiven  $NA = m\lambda/dr_n$  ist abhängig von der für die Abbildung verwendeten Wellenlänge  $\lambda$  und Beugungsordnung  $m$ , sowie der äußersten Zonenbreite  $dr_n$ . Nach dem Rayleigh-Kriterium beträgt die Auflösung der ersten Beugungsordnung einer Zonenplatte  $1.22 \cdot dr_n$  und entspricht somit etwa der äußeren Strukturbreite. Die bisherige Methode zur Steigerung des Auflösungsvermögens bestand daher in der Verringerung der äußeren Zonenbreiten. Mittels Elektronenstrahlolithographie, Trockenätzprozessen und galvanischer Abscheidung können derzeit Zonenplatten mit äußeren Zonenbreiten bis zu 15 nm erzeugt werden [22]. Neben dem Auflösungsvermögen ist der Beugungswirkungsgrad einer Zonenplatte eine wichtige Größe für deren Güte. Dieser beschreibt das Verhältnis der in eine Beugungsordnung  $m$  gebeugten Intensität zur auf die Optik einfallenden Gesamtintensität und ist nach der klassischen geometrisch-optischen Theorie dünner Gitter von der Höhe der beugenden Strukturen abhängig. Durch einen hohen Wirkungsgrad wird die Belichtungszeit bei der Abbildung in einem Vollfeldmikroskop verringert und der Einfluß von Strahlenschäden auf das zu untersuchende Objekt minimiert. Für immer kleiner werdende Strukturbreiten nehmen die erforderlichen Aspektverhältnisse der Zonen zu, wodurch die Herstellung hochauflösender, effizienter Optiken durch limitierende Faktoren in der Nanostrukturierung zunehmend erschwert wird.

Alternativ zur Verkleinerung der Zonenplattenstrukturen können hohe Beugungsordnungen für die röntgenmikroskopische Abbildung genutzt werden. Dies führt zu einer Steigerung der numerischen Apertur, da diese mit der Beugungsordnung  $m$  skaliert. Der auf diese Weise erzielten Auflösungssteigerung steht eine Verringerung der Beugungseffizienz von Zonenplatten in hohen Beugungsordnungen entgegen, da entsprechend der klassischen Vorhersagen für dünne Gitter der Beugungswirkungsgrad mit dem Quadrat der zur Abbildung genutzten Ordnung  $m$  abnimmt. Entgegen der geometrisch-optischen Theorie zeigen elektrodynamische Rechnungen, daß durch die Neigung von Zonenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen gegen die optische Achse die Effizienz in einzelnen hohen Ordnungen signifikant gesteigert werden kann. Dieser Volumeneffekt wird durch die Einhaltung der lokalen Bragg-Bedingung bei der Röntgenbeugung in den Zonenstrukturen erzielt. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Beugungsphänome in Zonenplatten mit hohen Aspektverhältnissen mittels der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen theoretisch untersucht. Die Ergebnisse dieser Rechnungen liefern um eine Größenordnung höhere Effizienzen in hohen Ordnungen bei Einhaltung der lokalen Bragg-Bedingung. Dies ermöglicht die Herstellung hoch effizienter Volumen-Zonenplattenobjektive für die röntgenmikroskopische Abbildung in hohen Beugungsordnungen.

Die Entwicklung von dreidimensionalen, geneigten Zonenplattenstrukturen für Volumenröntgenbeugung erweist sich basierend auf den existierenden Nanostrukturierungsprozessen als hochgradig anspruchsvoll. In dieser Arbeit wird als Ansatz für die



Herstellung von geneigten Zonen ein sog. Stack-Prozeß eingeführt, bei dem mehrere Einzelzonenplatten direkt mit hoher Präzision übereinander geschichtet werden. Der Neigungswinkel der Strukturen wird dabei durch abnehmende Zonenradien der einzelnen Zonenplattenlagen approximiert. Ein weiterer Vorteil des Stack-Prozesses besteht in der Möglichkeit zur Fabrikation von ungeneigten Zonenstrukturen mit sehr hohen Aspektverhältnissen. Der Beugungswirkungsgrad der ersten Beugungsordnung nimmt mit zunehmender Photonenenergie stark ab, skaliert jedoch proportional zur Strukturhöhe der beugenden Strukturen. Verzichtet man bei der Herstellung auf die Anpassung des Neigungswinkels wird die Gesamthöhe der Strukturen nur durch die Anzahl der übereinandergelagerten Zonenplattenlagen begrenzt. Dies ermöglicht die Prozessierung von hocheffizienten Zonenplatten für die röntgenmikroskopische Abbildung im multi-keV- und harten Röntgenbereich.

Experimentell sind solche Multi-Lagen- oder auch Volumenzonenplatten bisher nicht realisiert wurden. Da diese Optiken die Möglichkeit bieten, hohe Ortsauflösungen im sub-10 nm-Bereich mit für diesen Röntgenbereich hohen Effizienzwerten zu verbinden, sind sie die erste Wahl als Objektive in modernen Röntgenmikroskopen. Im Rahmen dieser Arbeit soll daher erstmalig theoretisch und experimentell die Realisierbarkeit derartiger Zonenplattenstrukturen, sowie deren Limitierungen beim praktischen Einsatz ausgelotet werden. Dazu werden die Einflüsse von Herstellungsfehlern auf die Beugungseigenschaften von Volumenzonenplatten mittels elektrodynamischen Rechnungen untersucht und mit experimentell ermittelten Werten von hergestellten Multi-Lagen-Zonenplatten verglichen.



## 2 Optiken für die Röntgenmikroskopie

Nach der Entdeckung der Röntgenstrahlung durch den Namen gebenden Physiker Wilhelm Conrad Röntgen im Jahr 1895 wurde deren Nutzung für bildgebende Verfahren stetig weiterentwickelt. Aufgrund des hohen Durchdringungsvermögens von Röntgenphotonen durch Materie entwickelten sich für die Abbildung mit Röntgenstrahlung in den Folgejahren zahlreiche Anwendungsgebiete in Physik, Biologie, Medizin und den Materialwissenschaften. In den 1970-er Jahren wurden erstmalig Auflösungssteigerungen gegenüber der konventioneller Lichtmikroskopie bei röntgenmikroskopischen Abbildungen erzielt. Die Notwendigkeit von immer höheren Auflösungsvermögen zur Lösung von wissenschaftlichen und technischen Fragestellung führte dabei zu vielfältigen Entwicklung von Röntgenoptiken. Dabei unterscheidet man nach dem physikalisch-optischen Effekt, der bei der Abbildung genutzt wird, in Brechungs-, Beugungs- oder Reflexionsoptiken. Für die unterschiedlichen röntgenoptische Abbildungsmethoden werden Optiken mit geeigneten Parametern als fokussierende Nano-, hochauflösende Objektiv- oder Kondensoroptik benötigt. In Abhängigkeit vom verwendeten Röntgenenergiebereich und den Anforderungen der mikroskopischen Untersuchungen ergeben sich für die verschiedenen Optiktypen charakteristische Merkmale und Eigenschaften. In den folgenden Abschnitten wird auf die Wechselwirkungsprozesse beim Durchgang von Röntgenstrahlung durch Materie eingegangen. Anschließend werden die Parameter, Eigenschaften und Wirkungsweisen der wichtigsten refraktiven, reflektiven und diffraktiven Röntgenoptiken beschrieben und miteinander verglichen. Aus diesem Vergleich wird motiviert, warum die im Rahmen dieser Arbeit beschriebene Entwicklung von sog. Volumenzonenplatten speziell für hochauflösende Mikroskopie im weichen und harten Röntgenbereich besonders wertvoll ist.

### 2.1 Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie

Die Wechselwirkung von Röntgenstrahlung mit Materie wird durch photoelektrische Absorption und elastische Streuung bestimmt [98]. Daraus resultiert eine Dämpfung und Phasenschiebung der einfallenden Welle. Wird eine Materieschicht der Dicke  $z$  mit dem komplexen Brechungsindex  $\tilde{n} = n - j\beta = 1 - \delta - j\beta$  durch eine ebene Welle mit der Amplitude  $A_0$  und der Wellenlänge  $\lambda$  bestrahlt, so ergibt sich für die transmittierte Welle der Amplitude  $A_1$  der Transmissionskoeffizient

$$T = \frac{A_1}{A_0} = \exp\left(-\frac{2\pi}{\lambda}\beta z\right) \cdot \exp\left(j\frac{2\pi}{\lambda}\delta z\right) \cdot \exp\left(-j\frac{2\pi}{\lambda}z\right). \quad (2.1)$$

Dabei beschreibt der erste Exponent in Gleichung 2.1 die Dämpfung und der zwei-

## 2 Optiken für die Röntgenmikroskopie

te die Phasenschiebung der Amplitude der einfallenden Welle. Das Verhältnis der Intensitäten von transmittierter zu einfallender Welle ergibt sich mit  $I_0 = A_0 \cdot A_0^*$  und  $I_1 = A_1 \cdot A_1^*$ , wobei  $A_0^*$  und  $A_1^*$  die komplex konjugierten Amplituden beschreiben, zu

$$\frac{I_1}{I_0} = \exp\left(-\frac{4\pi}{\lambda}\beta z\right). \quad (2.2)$$

Aus Gleichung 2.2 ergibt sich der lineare Absorptionskoeffizient  $\mu_1 = 4\pi\beta/\lambda$ . Häufig wird dieser in Abhängigkeit von der Dichte  $\rho$  als Massenabsorptionskoeffizient  $\mu = \mu_1/\rho$  dargestellt. Division von  $\mu_1$  durch die Anzahl der betrachteten Atome  $N$  liefert den atomaren Wirkungsquerschnitt  $\sigma_a$  für photoelektrische Absorption. Die Phasenschiebung hat im Gegensatz zur Absorption keinen Einfluß auf die Intensitäten sondern nur auf die Amplituden. Ein entsprechender Phasenschiebungskoeffizient  $\eta$  ergibt sich aus Gleichung 2.1 zu  $\eta = 2\pi\delta/\lambda$ . Sowohl Phasenschiebung als auch Absorption ergeben sich durch Streuung der einfallende Welle an den Atomen der Materieschicht. Dies wird beschrieben durch den atomaren Streufaktor  $f = f_1 + jf_2$  [47]. Die Koeffizienten  $\delta$  und  $\beta$  der komplexen Brechzahl  $\tilde{n}$  können mit Hilfe des Streufaktors wie folgt berechnet werden:

$$\delta = \frac{r_0\lambda^2}{2\pi}Nf_1 \quad \text{und} \quad \beta = \frac{r_0\lambda^2}{2\pi}Nf_2, \quad (2.3)$$

wobei  $r_0 = 2.82 \cdot 10^{-15}$  m den Elektronenradius und  $N$  die Anzahl der Atome, gegeben durch  $N = N_A \cdot \rho/M$ , mit der Avogadro-Konstante  $N_A$ , der Materialdichte  $\rho$  und der molaren Masse  $M$  meint. Die Faktoren  $f_1$  und  $f_2$  sind in Abhängigkeit von der Photonenenergie und dem verwendeten Material tabelliert [40, 41].

Aus Gleichung 2.3 folgt, daß  $\delta$  und  $\beta$  im Röntgenenergiebereich für alle Materialien sehr klein und daraus resultierend die Brechungsindizes nahezu eins sind. Dies hat sehr lichtschwache refraktive Röntgenoptiken zur Folge, da für Photonenenergien  $E_{\text{photon}} < 10$  keV die Absorption im Linsenmaterial gleichzeitig sehr hoch ist. Des weiteren ist der Reflexionsgrad bei senkrechtem Einfall für alle Materialien sehr gering, so daß konventionelle Spiegel nicht zur Abbildung genutzt werden können. Dieser Effekt wird durch die Verwendung von Totalreflexions- oder Multi-Schicht-Spiegeln verringert. Alternativ werden beugende Röntgenlinsen, sog. Fresnelsche Zonenplatten, für die mikroskopische Abbildung im weichen und harten Röntgenbereich eingesetzt. Die folgenden Abschnitte beschreiben die Wirkungsweise und die wichtigsten Parameter von refraktiven, reflektiven und diffraktiven Röntgenoptiken und Linsensystemen.

### 2.2 Refraktive Röntgenoptiken

Refraktive Röntgenoptiken sind abbildende röntgenoptische Systeme, deren Funktionsweise auf der Brechung von Röntgenstrahlung an Grenzflächen zwischen Materialien mit verschiedenen komplexen Brechungsindizes  $\tilde{n}$  beruht. Die Brechung wird nach

dem Snelliusschen Brechungsgesetz beschrieben:

$$\frac{n_1}{n_2} = \frac{\sin \alpha_2}{\sin \alpha_1}, \quad (2.4)$$

mit den Brechzahlen  $n_1$  und  $n_2$  der an die Grenzfläche angrenzenden Medien und den Ein- bzw. Ausfallswinkel  $\alpha_1$  und  $\alpha_2$ , welche gegen die Normale im Auftreffpunkt des Röntgenstrahls gemessen werden (siehe Abbildung 2.1). Der Realteil des Brechungsindex  $(1 - \delta)$  in Feststoffen ist im Röntgenenergiebereich kleiner als eins. Daraus resultierend wird Röntgenstrahlung, die aus Luft oder Vakuum in einen Feststoff eintritt, vom Lot weg gebrochen. Daher muss eine Röntgenstrahlung fokussierende Brechungslinse eine (bi)konkave Form haben [67, 116, 117], wie sie für sichtbares Licht von zerstreuernden Linsen bekannt ist. Um alle achsenparallelen Strahlen in einem Fokuspunkt zu bündeln, werden parabolische Linsenoberflächen genutzt. Aus Gleichung 2.3 ergibt sich für den Brechungsindex von Röntgenstrahlung eine geringe Abweichung von eins, was sehr hohe Brennweiten und kleine numerische Aperturen zur Folge hat. Für den praktischen Einsatz von refraktiven Optiken werden Brennweiten im Bereich von wenigen Millimetern bis zu einigen Metern benötigt. Dazu wird eine Vielzahl von Einzellinsen mit stark gekrümmten, brechenden Oberflächen hintereinander angeordnet, um je nach Photonenenergie die gewünschte Brennweite zu erzielen. Ein solches optisches System von Einzellinsen wird als refraktive Verbundlinse (engl. Compound Refractive Lens - CRL) bezeichnet [115]. Abbildung 2.1 zeigt schematisch den Strahlengang und die wichtigsten Kenngrößen einer parabolischen CRL.

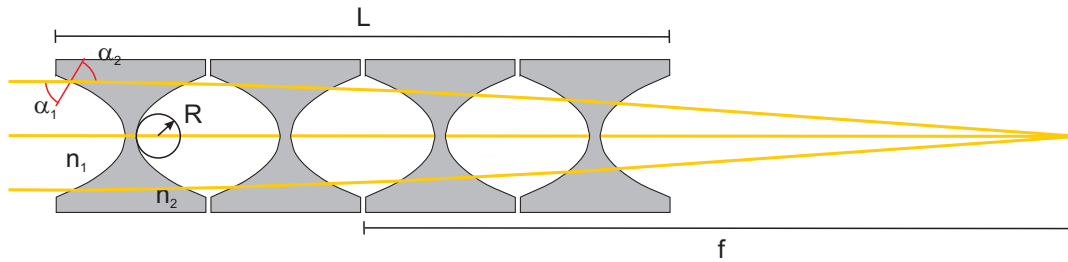


Abbildung 2.1: Strahlengang in einer refraktiven Verbundlinse der Länge  $L$  mit der Brennweite  $f$  zusammengesetzt aus vier parabolischen, refraktiven Einzellinsen.

Ist die Brennweite  $f$  groß gegenüber der Länge  $L$  einer parabolischen CRL mit dem Linsenprofil  $x^2 = 2Ry$  bestehend aus  $N$  Einzellinsen, ergibt sie sich zu

$$f = \frac{R}{2\delta_2 N}, \quad (2.5)$$

wobei  $R$  den Krümmungsradius der Einzellinsen beschreibt [117]. Der Absorptionskoeffizient von Röntgenstrahlung in Materie ist von der Dichte und der Ordnungszahl des verwendeten Materials abhängig. Um die Absorption in refraktiven Linsensystemen so

## 2 Optiken für die Röntgenmikroskopie

gering wie möglich zu halten, werden je nach Wellenlängenbereich am häufigsten Beryllium, Silizium, Aluminium, Nickel und der röntgenbeständige Kunststoff SU 8 als Linsenmaterialien genutzt.

Refraktive Röntgenoptiken werden in Linsen mit Linien- und Punktfokus unterteilt. Um einen Linienfokus zu erzeugen werden CRLs aus eindimensional gekrümmten, brechenden Flächen mittels reaktivem Ionenätzen [5, 112] oder röntgenlithographischer Verfahren [48, 81, 82] hergestellt. Für die Randstrahlen bei parabolischen Profilen nimmt die optische Weglänge durch das Linsenmaterial proportional zum Quadrat der Linsenapertur zu. Dies verringert die maximal nutzbare Apertur durch die Absorption des Materials auf einige hundert Mikrometer. Eine Erhöhung der Eingangsapertur wird bei der Herstellung sog. Kinoform- oder Mosaiklinsen erzielt. Da der für die Funktion der CRL genutzte Effekt der Brechung an der Oberfläche der Linsenelemente stattfindet, kann systematisch Linsenmaterial in den Randbereichen entfernt werden ohne die refraktiven Eigenschaften zu verändern. CRLs mit Punktfokus werden aus rotationssymmetrischen, refraktiven Elementen geprägt [66] oder aus einer um 90°-gedrehten Anordnung von Linsen mit Linienfokus gefertigt [82]. Mit Hilfe derartig gekreuzter CRL-Systeme wurde eine minimale Fokusgröße von 50 nm bei einer Photonenenergie von ca. 15 keV erreicht [112]. Der typische Photonenenergiebereich für den Einsatz von CRLs liegt zwischen 5 – 1000 keV. Unterhalb 5 keV nimmt die Effizienz der Optiken durch sehr hohe Absorption sehr stark ab. Die obere Energiegrenze ist durch die Anzahl der notwendigen Einzellinsen in der CRL begrenzt, welche für praktisch sinnvolle Brennweiten mit zunehmender Röntgenenergie signifikant steigt.

### 2.3 Reflektive Röntgenoptiken

Der Reflexionsgrad  $\rho_R$  einer reflektierenden Oberfläche bei senkrechten Strahlungseinfall ist nach den Fresnelschen Formeln gegeben durch

$$\rho_R = \frac{I_r}{I_{in}} = \left( \frac{\tilde{n} - 1}{\tilde{n} + 1} \right)^2, \quad (2.6)$$

wobei  $I_r$  und  $I_{in}$  die reflektierte und einfallende Intensität beschreiben. Mit dem komplexen, energieabhängigen Brechungsindex  $\tilde{n} = 1 - \delta - j\beta$  ergibt sich für Röntgenstrahlung:

$$\rho_R = \frac{\delta^2 + \beta^2}{(2 - \delta)^2 + \beta^2} \approx \frac{(\delta^2 + \beta^2)}{4}. \quad (2.7)$$

Aus Gleichung 2.7 wird ersichtlich, daß nur sehr geringe Reflexionsgrade bei senkrechtem Einfall erzielt werden und somit konventionelle Spiegel im Bereich der Röntgenstrahlung nicht als Optiken genutzt werden können. Alternativ werden Optiken basierend auf der Totalreflexion an Einzelschichten oder der konstruktiven Überlagerung von an Vielfachschichten reflektierten Wellen genutzt, um den Reflexionsgrad der verwendeten Materialien zu steigern. Man unterscheidet die reflektierenden Röntgenoptiken in Totalreflexionsspiegel, Multischichtspiegel, Kapillaroptiken und Wellenlei-

ter. Die röntgenoptischen Eigenschaften dieser Reflexionslinsen werden im Folgendem kurz beschrieben.

### 2.3.1 Totalreflexionsspiegel

Totalreflexionsspiegel sind aus einem ebenen oder gekrümmten Substrat und einer darauf aufgetragenen Reflexionsschicht aufgebaut. Die Abbildungseigenschaften von Röntgenspiegeln werden dabei durch die Kontur der Oberfläche und die Reflexionseigenschaften durch die Beschichtung bestimmt. Wird der Einfallswinkel der zu reflektierenden Strahlung - gemessen von der Spiegelnormale - erhöht, bis der gebrochene Strahl parallel zur Spiegeloberfläche verläuft, gilt unter Vernachlässigung von Absorptionseffekten

$$\sin \alpha_g = 1 - \delta. \quad (2.8)$$

Somit werden für Einfallswinkel größer als  $\alpha_g$  alle Röntgenstrahlen an der Grenzfläche reflektiert (Totalreflexion). Aus Gleichung 2.8 ergibt sich mit  $\Theta_g = 90^\circ - \alpha_g$  für den Grenzwinkel  $\Theta_g$  der Totalreflexion:

$$\cos \Theta_g = 1 - \delta, \quad (2.9)$$

und aus  $\delta \ll 1$  folgt in guter Näherung:

$$\sin \Theta_g = \sqrt{2\delta}. \quad (2.10)$$

Der Reflexionsgrad in Abhängigkeit vom Einfallswinkel unter streifendem Einfall ( $\Theta$  nahe  $0^\circ$ ) ergibt sich unter Berücksichtigung der Absorption im Spiegelmedium zu [7]:

$$\rho_R(\Theta) = \frac{(\Theta - A)^2 + B^2}{(\Theta + A)^2 + B^2}$$

mit  $A = \sqrt{\frac{\sqrt{a^2 + b^2} + a}{2}}$  und  $B = \sqrt{\frac{\sqrt{a^2 + b^2} - a}{2}}$ ,

sowie  $a = \Theta^2 - \Theta_g^2$  und  $b = 2\beta$ . (2.11)

Durch Oberflächenrauigkeiten oder Kontaminationen wird der Reflexionsgrad bei realen Totalreflexionsspiegeln gesenkt. Um die Abbildung der Optiken zu beeinflussen werden ebene, sphärische oder asphärische Spiegeloberflächen genutzt. Typische asphärische Formen sind Ellipsoide, Paraboloiden, elliptische Zylinder oder parabolische Zylinder, welche für die Fokussierung bzw. Parallelisierung von Röntgenstrahlung eingesetzt werden. Für die röntgenmikroskopische Abbildung werden spezielle zusammengesetzte Reflexionslinsensysteme genutzt. Dazu zählen unter anderem Kirkpatrick-Baez-Spiegel (kurz KB-Spiegel), welche aus zwei zueinander senkrecht stehenden, gekreuzten, elliptischen Zylinderspiegeln aufgebaut sind und somit eine horizontale und vertikale Fokussierung der Strahlung ermöglichen [57]. Ein weiteres abbil-

denes Linsensystem bilden die Wolter-Optiken [131]. Diese nutzen zwei Reflexionen an einer Kombination aus Rotationshyperboloid und Rotationsparaboloid bzw. Rotationsellipsoid, wobei die Brennpunkte der beiden Spiegelkomponenten zusammenfallen. Beide Spiegelsysteme erfüllen die Abbesche Sinusbedingung und können somit sowohl achsennahe als auch achsenferne Objektpunkte in Bildpunkte abbilden.

Als Substrat für Totalreflexionsspiegel werden Materialien genutzt, die sich mechanisch gut bearbeiten und polieren lassen, sowie eine geringe Wärmeausdehnung und hohe thermische Belastbarkeit aufweisen. Meist werden dafür Gläser, Quarzgläser oder einkristalline Siliziumkristalle verwendet. Bei der Formung der Substrate werden hohe Anforderungen hinsichtlich der Formtreue und geringer Oberflächenrauigkeiten gestellt, um Abweichungen bei den optischen Eigenschaften zu vermeiden. Im Anschluß an die Oberflächenmodifikation wird eine für den verwendeten Energiebereich geeignete, reflektierende Grenzschicht aufgebracht. In seltenen Fällen wird direkt die Substratoberfläche als Reflexionsschicht genutzt.

### 2.3.2 Multischichtspiegel

Bei Multischichtspiegeln besteht die Reflexionsschicht aus einer zur Oberfläche senkrechten periodischen Struktur. Dazu werden abwechselnd Schichten der Dicke  $z \approx \lambda/4$  mit hoher Brechzahl  $\tilde{n}_1$  und relativ niedriger Brechzahl  $\tilde{n}_2$  auf einem Trägersubstrat aufgebracht. Die an den Grenzflächen reflektierte Strahlung mit geringem Reflexionsgrad wird kohärent und phasengerecht überlagert, wodurch ein signifikant erhöhter Reflexionsgrad bei senkrechtem Strahlungseinfall erzielt werden kann [98].

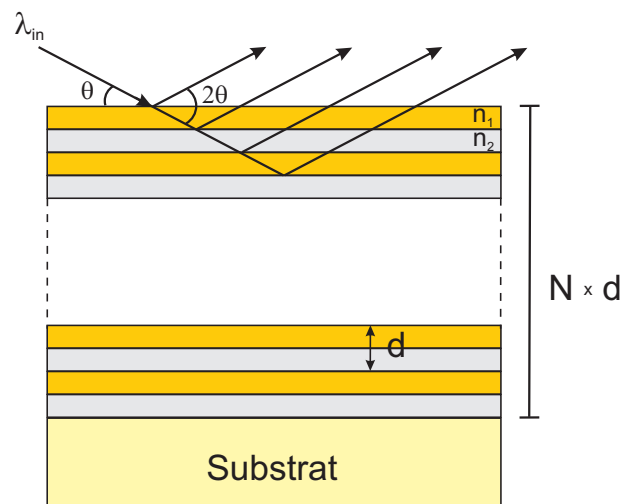


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung eines Multischichtspiegels bestehend aus zwei Materialien mit  $N$  Perioden der Dicke  $d$  und den Brechzahlen  $n_1$  und  $n_2$ .



Abbildung 2.2 zeigt schematisch den periodischen Schichtaufbau eines Multischichtspiegels. Der spektrale Reflexionsgrad wird durch die Anzahl  $N$  der Perioden einer Dicke  $d$ , sowie die Anzahl, Materialien, Dicken und Anordnung der Einzelschichten in einer Periode bestimmt. Sind die Schichtparameter bekannt, kann der Reflexionsgrad in Abhängigkeit vom Einfallswinkel und der verwendeten Wellenlänge mit Hilfe der Fresnelschen Formeln berechnet werden. In der Praxis führen Dichteabweichungen, Rauigkeiten und Grenzflächeninterdiffusion zu einer Verringerung der erzielbaren Reflexionsgrade.

Aus der Bragg-Bedingung lässt sich der Zusammenhang zwischen Wellenlänge  $\lambda$ , Beugungsordnung  $m$ , Periode der Multischicht  $d$  und dem halben Ablenkswinkel  $\theta_{B,m}$  (Braggwinkel) der reflektierten Röntgenstrahlung herleiten. Für hohe Photonenenergien kann die Absorption vernachlässigt werden [119] und die vereinfachte Bragg-Bedingung lautet

$$m\lambda = 2d \sin \theta_{B,m} \sqrt{1 - \frac{2\bar{\delta}}{\sin^2 \theta_{B,m}}}, \quad (2.12)$$

wobei durch  $\bar{\delta} = \frac{1}{d} \sum_{i=1}^N d_i \delta_i$  eine Wichtung der jeweiligen Einzelschichtdicken berücksichtigt wird. Für weiche Röntgenenergien muss die Absorption der Röntgenstrahlung in die Bragg-Bedingung einbezogen werden. Aufgrund der Bragg-Bedingung ergibt sich für Multischichtspiegel zusätzlich eine filternde Funktionalität. Da nur ein geringer Wellenlängenbereich an einer vorgegeben Multischicht reflektiert wird, können diese Optiken als Monochromatoren eingesetzt werden. Die erzeugte Bandbreite  $\Delta\lambda/\lambda = 1/N$  hängt dabei von der Anzahl der Perioden  $N$  ab [98].

Die periodischen Schichtsysteme der Multischichtspiegel werden elektrogalvanisch oder durch Aufdampfen bzw. Aufputtern erzeugt. Eine Vielzahl an Materialkombinationen haben sich dabei als geeignet erwiesen, unter anderem W/Si, Mo/Si, Ru/B<sub>4</sub>C und Ni/B<sub>4</sub>C [65]. Bei der Herstellung werden hohe Anforderungen an die Oberflächenbeschaffenheit und die Grenzflächen der Einzelschichten gestellt. Mit modernen Strukturierungsverfahren lassen sich derzeit minimale Periodendicken  $d$  bis zu ca. 1.5 nm erzeugen [124].

### 2.3.3 Röntgenkapillaren

Die röntgenoptischen Eigenschaften von Röntgenkapillaren basieren auf der Totalreflexion von Röntgenstrahlung an glatten inneren Oberflächen von Kapillaren (vergleiche Totalreflexionsspiegel Abschnitt 2.3.1). Als Kapillarmaterial wird dazu gewöhnlich Glas eingesetzt. Für Röntgenenergien  $> 250$  eV kann der Grenzwinkel der Totalreflexion  $\Theta_g$  durch die vereinfachte Formel

$$\Theta_g = 0.02 \cdot \frac{\sqrt{\rho}}{E} \quad (2.13)$$

berechnet werden [15]. In Gleichung 2.13 beschreibt  $\rho$  die Dichte des Kapillarmaterials und  $E$  die Photonenenergie. Oberflächenungenauigkeiten und Rauigkeiten im Inne-

## 2 Optiken für die Röntgenmikroskopie

ren der Kapillare beeinflussen den Reflexionsgrad und können zu diffusen Anteilen im reflektierten Strahl führen. Röntgenkapillaren werden unterschieden in Optiken mit einmaliger und vielfacher Totalreflexionen im Inneren. Zusätzlich werden die röntgenoptischen Eigenschaften durch geeignete Kapillar-Konturen beeinflusst [8]. Beispielsweise kann die Strahlung einer punktförmigen Quelle mit Hilfe einer Monokapillare mit Ellipsoidform nach einmaliger Totalreflexion in einen Fokuspunkt gebündelt werden (siehe Abbildung 2.3 (a)). Für die jeweilige Anwendung müssen dazu die Parameter des Ellipsoids angepasst werden. Eine derartige ellipsoidale Monokapillare mit einmaliger Totalreflexion im Inneren wird am BESSY-II-Vollfeld-Röntgenmikroskop als Kondensoroptik eingesetzt (siehe Abschnitt 3.2.1). Da der Reflexionswinkel stets kleiner als der Grenzwinkel der Totalreflexion sein muss, wird nur ein Teil der Kapillar-Innenfläche für die Fokussierung genutzt. Für eine vergrößerte Abbildung der Quelle bei einer Fokussierung wird der Quell-nahe Teil und umgekehrt bei Verkleinerung der Quell-ferne Teil des Ellipsoids verwendet. Im Gegensatz zur Ellipsoidform ermöglicht eine paraboloidale Monokapillare die von einer Punktquelle ausgehende Strahlung zu parallelisieren bzw. umgekehrt ein paralleles Strahlenbündel zu fokussieren.

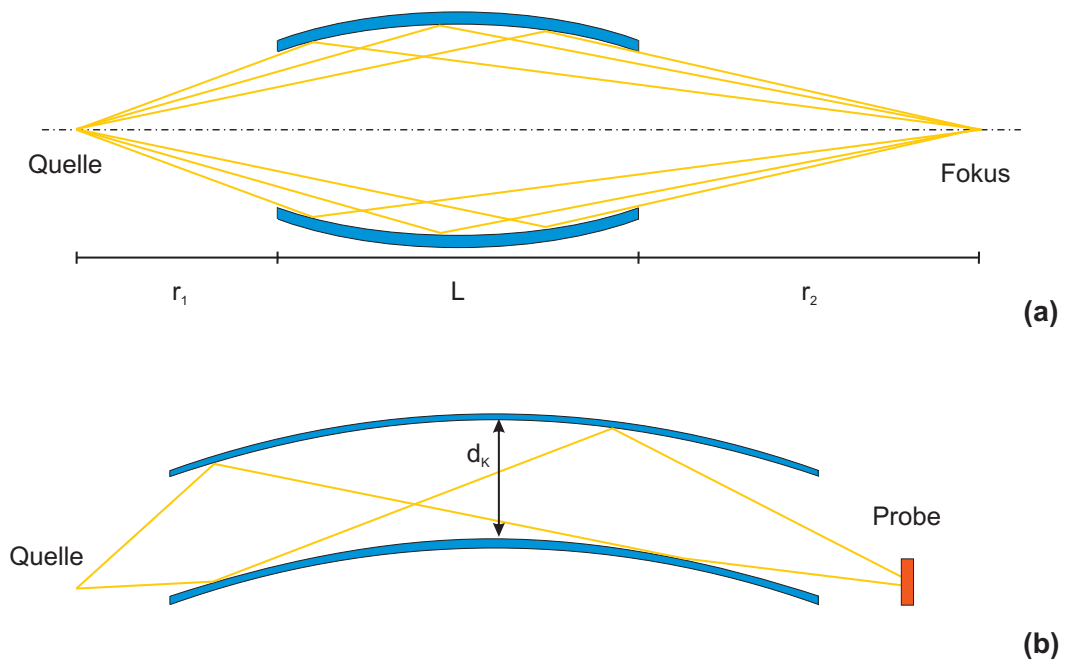


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung des Strahlenganges in (a) einer fokussierenden, ellipsoidalen Monokapillare mit einmaliger Totalreflexion und (b) einer schwach gekrümmten Zylinderkapillare mit vielfacher Totalreflexion.

Um divergente Röntgenstrahlung über lange Strecken mit geringen Verlusten zu

transportieren werden zylindrischen Einzelkapillaren mit vielfacher Totalreflexion im Inneren eingesetzt. Der Ausgang der Kapillare bildet dann eine Strahlungsquelle mit dem Durchmesser des Kapillarkanals und einer mit dem Grenzwinkel korrespondierenden Divergenz. Dies ermöglicht eine gezielte Erhöhung der Strahlungsintensität am Ausgangsort der Kapillare. Schwach gekrümmte Zylinderkapillaren werden zur Änderung der Ausbreitungsrichtung von Röntgenstrahlung eingesetzt (siehe Abbildung 2.3 (b)). Der Teil der Strahlung der dabei erfasst und weitergeleitet werden kann, ergibt sich mit dem Grenzwinkel der Totalreflexion  $\Theta_g$  geometrisch zu:

$$d_K = \frac{1}{2} R \Theta_g^2, \quad (2.14)$$

mit dem Krümmungsradius  $R$  und dem Innendurchmesser  $d_K$  der Kapillare [15]. Aus den Gleichungen 2.13 und 2.14 lassen sich die optimalen Parameter für den Strahlungstransport in gekrümmten Kapillaren mit vielfacher Totalreflexion bei vorgegebener Photonenenergie errechnen.

Optische Systeme, welche aus einer Vielzahl von gekrümmten Einzelkapillaren aufgebaut sind, werden Röntgenpolykapillaren genannt. Dabei werden die Krümmungen der Einzelkapillaren so erzeugt, daß deren Eingangsöffnungen auf die gemeinsame Quelle und die jeweiligen Kapillarausgänge auf den Fokus der Optik gerichtet sind, wodurch eine signifikante Intensitätserhöhung im Brennfleck der Polykapillare erzielt wird. In Abhängigkeit von der Anordnung können Röntgenpolykapillaren als fokussierende oder parallelisierende Optiken eingesetzt werden. Moderne Polykapillaren für Röntgenstrahlung sind monolithische Systeme aus mikrostrukturiertem Glas und bestehen in einigen Fällen aus bis zu mehreren Millionen einzelner gekrümmter Röntgenkapillaren [13].

### 2.3.4 Wellenleiter für Röntgenstrahlung

In Analogie zu Wellenleitern für sichtbares Licht ist ein ebener Röntgenwellenleiter (engl. X-ray Waveguide) ein Dünnschichtresonator bestehend aus einem schwach absorbierendem Material umgeben von zwei Metallschichten mit geringerer Brechzahl (siehe Abbildung 2.4) [31, 117]. Wird der Wellenleiter mit Röntgenstrahlung beleuchtet, können sich aufgrund der vorgegebenen, geometrischen und optischen Parameter abhängig von der Photonenenergie nur bestimmte Moden der beleuchtenden Wellenfront entlang der inneren Fläche des Wellenleiters mittels Totalreflexion ausbreiten.

Um die Resonanzbedingungen bei der Ausbreitung von Röntgenstrahlung einer bestimmten Wellenlänge innerhalb eines Wellenleiters zu erfüllen, müssen die Brechzahlen der verwendeten Materialien  $n_0 > n_2 > n_3 \geq n_1$  sein [30]. Am Ende des Wellenleiters werden die Röntgenstrahlen ausgekoppelt, wodurch ein Quellpunkt mit hoher Intensität, begrenzter spektraler Auflösung und geringer Divergenz erzeugt wird. Die Divergenz der aus dem Wellenleiter austretenden Röntgenstrahlen wird bestimmt durch die Abmessung des Transportkanals und die röntgenoptischen Eigenschaften der umgebenden Metallschicht, welche den Grenzwinkel der Totalreflexion im Inneren

## 2 Optiken für die Röntgenmikroskopie

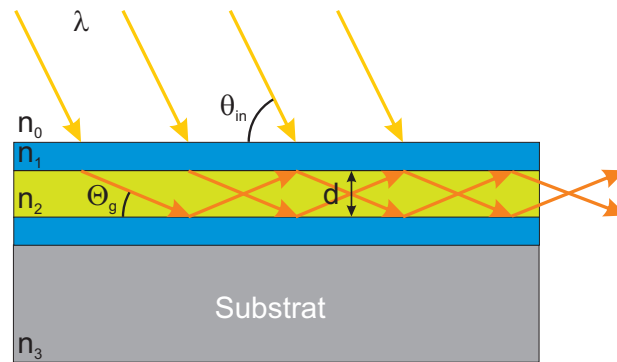


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung einer Wellenleiterstruktur für Röntgenstrahlung bestehend aus einem schwach absorbierenden Transportkanal mit der Brechzahl  $n_2$  umgeben von Metallschichten mit der Brechzahl  $n_1$ . Die unter dem Winkel  $\theta_{in}$  einfallenden Röntgenstrahlen werden in den Wellenleiter eingekoppelt und breiten sich mittels Totalreflexion mit dem Grenzwinkel  $\Theta_g$  bis zum Ausgang aus.

beeinflussen (siehe Abschnitt 2.3.1 und 2.3.3). Moderne zweidimensionale Röntgenwellenleiter werden elektronenstrahlolithographisch erzeugt. Dabei bildet ein strukturierter Polymer-Resist den schwach absorbierenden Kern des Wellenleiters. Anschließend wird eine dünne Si- oder Cr-Schicht aufgebracht, welche als Ummantelung dient. Mit dieser Methode konnten Wellenleiter mit lateralen Abmessungen von bis zu 50 nm hergestellt werden [86].

Resultierend aus der Wirkungsweise und den Eigenschaften sind Wellenleiter keine optisch-abbildenden Systeme. Aufgrund der zunehmenden Absorption von Röntgenstrahlung im Inneren des Wellenleiters bei abnehmender Photonenenergie werden Wellenleiter ausschließlich im harten Röntgenbereich eingesetzt. Selbst für hohe Photonenenergien sind die Effizienzen von Röntgenwellenleitern dabei sehr gering. Gegenüber Kapillaroptiken bieten sie den Vorteil, daß Quellpunkte mit geringer Divergenz unter Erhaltung der Kohärenz erzeugt werden können. Dazu werden jedoch sehr hohe Genauigkeiten bei der Herstellung der Wellenleiterstrukturen benötigt.

### 2.4 Diffraktive Röntgenoptiken

Ein weiterer physikalischer Effekt, der für die Abbildung mit Röntgenoptiken nutzbar ist, ist die Beugung von Röntgenstrahlen an gitterförmigen Strukturen. Dabei unterscheidet man optische Systeme, die einen Punkt- bzw. Linienfokus erzeugen. Die meist verbreiteten diffraktiven Röntgenoptiken für die Mikroskopie im weichen und harten Röntgenbereich sind Fresnelsche Zonenplatten. Basierend auf den optischen Eigen-

schaften dieser Kreisgitterstrukturen wurden weitere Beugungsoptiken wie Multilayer-Lae-Linsen und Photonensiebe entwickelt. Im Folgendem werden die Wirkungsweise und Eigenschaften dieser diffraktiven Optiken beschrieben.

### 2.4.1 Fresnelsche Zonenplatten

Fresnelsche Zonenplatten sind radialsymmetrische Beugungsoptiken mit nach außen zunehmender Liniendichte. Ihre optischen Eigenschaften wurden erstmals von SORET [118] beschrieben. Die Geometrie und die wichtigsten Parameter einer Zonenplatte sind in Abbildung 2.5 schematisch dargestellt.

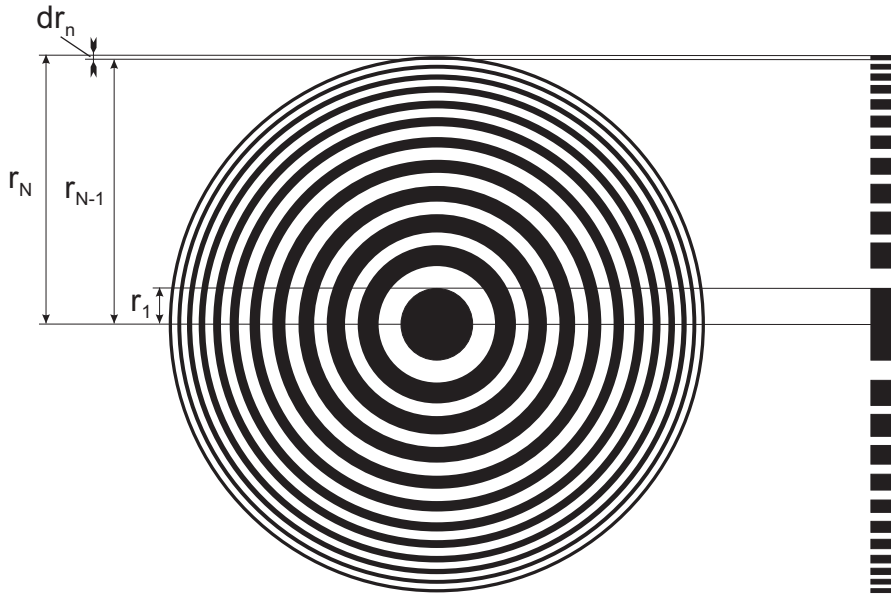


Abbildung 2.5: Aufsicht und Schnitt einer Fresnelschen Zonenplatte mit Radius  $r_1$  der ersten Zone, sowie den Radien  $r_N$  und  $r_{N-1}$  der beiden äußersten Zonen und der Breite  $dr_n$  der äußersten Zone.

Wird zur Vereinfachung angenommen, daß die Zonenplattenstrukturen völlig absorbierend sind, lassen sich die Radien der einzelnen Zonen aus folgender geometrisch-optischen Betrachtung ableiten: G sei eine Punktquelle, welche Strahlung der Wellenlänge  $\lambda$  emittiert und in einen Punkt B abgebildet werden soll (siehe Abbildung 2.6). Des weiteren sei der Abstand zwischen Quelle und Bildpunkt genau ein Vielfaches der Wellenlänge  $\lambda$ . Konstruktive Interferenz im Punkt B ergibt sich dann, wenn die Differenz der optischen Wege von G nach B für aufeinanderfolgende Zonen  $n$  und  $n - 1$  mit den Radien  $r_n$  und  $r_{n-1}$  gerade  $\lambda/2$  beträgt. Aus Abbildung 2.6 folgt:

$$g_{n+1} + b_{n+1} = g_n + b_n + \frac{\lambda}{2}. \quad (2.15)$$

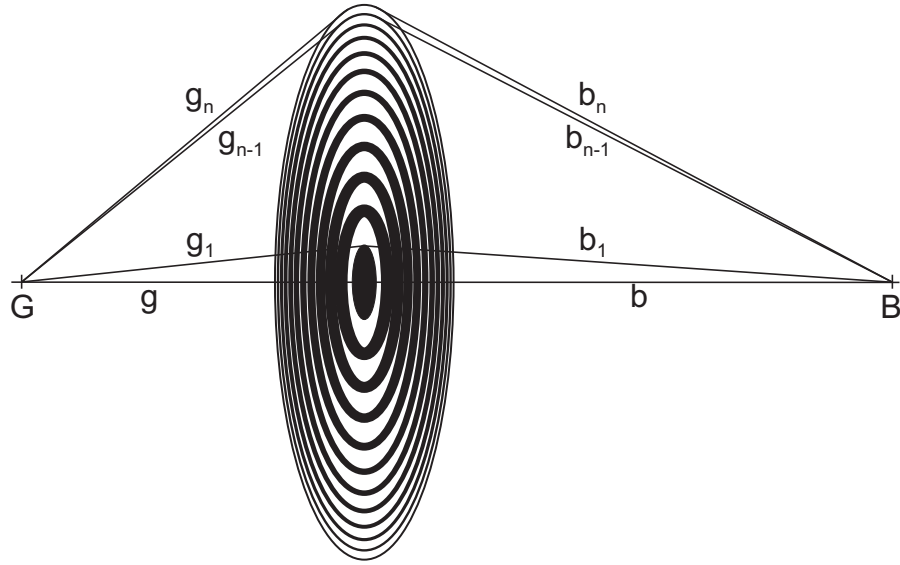


Abbildung 2.6: Fresnelsche Zonenkonstruktion zur Herleitung des Zonenplattenbildungsgesetzes [98].

Aus Gleichung 2.15 ergibt sich:

$$\sqrt{g^2 + r_n^2} + \sqrt{b^2 + r_n^2} = g + b + \frac{n\lambda}{2}. \quad (2.16)$$

Zweimaliges Quadrieren von Gleichung 2.16 und Auflösen nach  $r_n^2$  liefert das Zonenplattenbildungsgesetz:

$$r_n^2 = \frac{n\lambda(g+b)gb + \frac{1}{4}n^2\lambda^2(3gb + g^2 + b^2) + \frac{1}{8}n^3\lambda^3(b+g) + \frac{1}{64}n^4\lambda^4}{(g+b + \frac{1}{2}n\lambda)^2}. \quad (2.17)$$

Alle in dieser Arbeit hergestellten Zonenplattenstrukturen wurden nach Gleichung 2.17 berechnet. Die optischen Eigenschaften einer Zonenplatte mit einer Zonenzahl größer als 100 entsprechen denen einer dünnen Brechungslinse [121] und in der ersten Beugungsordnung gilt die Linsengleichung:

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{g} + \frac{1}{b}. \quad (2.18)$$

Betracht man den Grenzfall  $g$  gegen unendlich ( $b$  gegen  $f$ ), was einer Beleuchtung der Zonenplatte mit einer ebenen Welle entspricht, so ergibt sich nach Einsetzen von Gleichung 2.18 in Gleichung 2.17 und Vernachlässigung zweiter und höherer Terme in  $n\lambda$  das quadratische Zonenplattenbildungsgesetz:

$$r_n^2 = n\lambda f_\lambda. \quad (2.19)$$

Differenzieren von Gleichung 2.19 nach  $n$  liefert die Breite  $dr_n$  der  $n$ -ten Zone:

$$dr_n = \frac{r_n}{2n}. \quad (2.20)$$

Eine grundlegende Eigenschaft aller Beugungsoptiken ist das Vorhandensein mehrerer Beugungsordnungen  $m$ . Daher verfügen auch Zonenplatten über eine Vielzahl von Brennpunkten  $f_m$ . In Analogie zu Gleichung 2.19 folgt somit für ganzzahlige Vielfache von  $\lambda/2$ :

$$r_n^2 = mn\lambda f_{\lambda,m} \quad (2.21)$$

oder

$$f_{\lambda,m} = \frac{1}{m} f_{\lambda}. \quad (2.22)$$

Da der Beugungswirkungsgrad von Zonenplatten mit geringen Zonenhöhen indirekt proportional zum Quadrat der Beugungsordnung skaliert, wurde bisher in der Röntgenmikroskopie fast ausschließlich die erste Beugungsordnung  $m = +1$  zur Abbildung eingesetzt.

### Auflösungsvermögen nach Rayleigh

Wie bereits in Abschnitt 2.4.1 beschrieben, wirkt eine Zonenplatte mit einer Zonenzahl größer als 100 wie eine dünne Brechungslinse mit multiplen Brennpunkten. Nach der Abbeschen Theorie der Bildentstehung ist das Auflösungsvermögen einer idealen Linse abhängig von der numerischen Apertur  $NA$  der Optik und der Wellenlänge der verwendeten Strahlung. Die numerische Apertur einer Optik ergibt sich aus:

$$NA = Re(\tilde{n}) \sin(\Theta), \quad (2.23)$$

dabei beschreibt  $\Theta$  den halben Öffnungswinkel der Optik und  $\tilde{n}$  die komplexe Brechzahl des Mediums zwischen Objekt und Objektiv. Für weiche Röntgenstrahlung weicht der Realteil von  $\tilde{n}$  nur wenig von eins ab. Daraus folgt unter der Berücksichtigung, daß  $\Theta$  für hochauflösende Zonenplatten sehr klein ist:

$$NA_{ZP} = Re(\tilde{n}) \sin(\Theta) \approx 1 \cdot \tan(\Theta) = \frac{r_n}{f_{\lambda,m}} = \frac{m \cdot \lambda}{2 \cdot dr_n} \quad (2.24)$$

Aus Gleichung 2.24 wird ersichtlich, daß die numerische Apertur einer Zonenplatte nur durch Verringerung der äußeren Strukturbreiten oder durch Verwendung höherer Beugungsordnungen vergrößert werden kann. Das erreichbare Auflösungsvermögen einer Zonenplatte ergibt sich aus dem Rayleigh-Kriterium für inkohärente Beleuchtung [16]. Dieses liefert für den kleinsten Abstand  $\delta$  zweier Punkte, die mit einer Linse getrennt voneinander dargestellt werden können:

$$\delta = 1.22 \cdot \frac{\lambda}{2NA} \quad (2.25)$$

## 2 Optiken für die Röntgenmikroskopie

Für das Auflösungsvermögen einer Zonenplatte folgt unter Verwendung von Gleichung 2.24:

$$\delta = 1.22 \cdot \frac{dr_n}{m} \quad (2.26)$$

Die erreichbare Auflösung bei einer Abbildung mit der ersten Beugungsordnung beträgt somit ungefähr den Wert der äußersten Strukturbreite  $dr_n$  einer Zonenplatte.

### Beugungswirkungsgrad unter Vernachlässigung der dreidimensionalen Zonenstruktur

Der Beugungswirkungsgrad einer Zonenplatte  $\eta_m$  ist definiert als das Verhältnis der in die  $m$ -te Beugungsordnung fokussierten Strahlungsintensität zur Gesamtintensität der auf die Zonenplatte einfallenden Strahlung:

$$\eta_m = \frac{I_m}{I_0}. \quad (2.27)$$

Bei Vernachlässigung der durch die dreidimensionale Ausdehnung der Zonenstrukturen verursachten Beugungseffekte kann dieser durch die klassische, geometrisch-optische Theorie dünner Gitter nach Kirz berechnet werden [58]. Der Beugungswirkungsgrad eines dünnen Gitters mit der Dicke  $z$  für eine Beugungsordnung  $m \neq 0$  ergibt sich danach zu:

$$\eta_m(z) = \frac{1}{\pi^2 m^2} \sin^2(m\pi L/\Lambda) [\exp(-4\pi\beta_{AZ}/\lambda) + \exp(-4\pi\beta_{BZ}/\lambda) - 2 \cos(2\pi z(\delta_A - \delta_B)/\lambda) \exp(-2\pi z(\beta_A + \beta_B)/\lambda)]. \quad (2.28)$$

Hierbei beschreiben  $L/\Lambda$  das Strich-Periode-Verhältnis des Gitters, sowie  $\beta_A, \beta_B$  und  $\delta_A, \delta_B$  die Absorptions- bzw. Phasenschiebungskoeffizienten der beiden Gittermaterialien. Aus Gleichung 2.28 wird ersichtlich, daß die klassische Beugungseffizienz nur vom Strich-Periode-Verhältnis, jedoch nicht von der Periode und der Geometrie der Zonenstrukturen abhängt. Der Beugungswirkungsgrad skaliert indirekt proportional zum Quadrat der verwendeten Beugungsordnung  $m$ . Folglich werden nach der klassischen Theorie bei der Verwendung von höheren Beugungsordnungen selbst bei idealen Strich-Periode-Verhältnissen nur sehr kleine Werte erreicht. Für hohe Aspektverhältnisse der beugenden Strukturen verliert dieses Modell seine Gültigkeit und die Beugungseffizienz muss im Rahmen einer elektrodynamischen Theorie berechnet werden (siehe Kapitel 4). Im folgendem werden Spezialfälle diffraktiver Röntgenoptiken beschrieben, welche auf den Beugungseigenschaften von Fresnelschen Zonenplatten basieren.

### 2.4.2 Multilayer-Laue-Linsen

Eine Multilayer-Laue-Linse (engl. Multilayer Laue Lens - MLL) ist ein optisches System aus transmittierenden, beugenden Multilayerstrukturen [51, 70, 75] (siehe Abbildung 2.7). Analog zu linearen Zonenplatten ergibt sich die Periode der Multilayer-Schichten



aus dem Zonenplattenbildungsgesetz (siehe Formel 2.17, Abschnitt 2.4.1) und nimmt somit mit zunehmenden Abstand von der optischen Achse ab. Gegenüber konventionellen Zonenplatten können bei Multilayer-Laue-Linsen sehr hohe Aspektverhältnisse der beugenden Strukturen realisiert werden, woraus eine Erhöhung der Beugungseffizienzen dieser Optiken im harten Röntgenbereich ( $\lambda < 0.1 \text{ nm}$ ) resultiert. Zusätzlich kann der Beugungswirkungsgrad durch den Einsatz von zur optischen Achse geneigten MLLs für die röntgenoptische Abbildung gesteigert werden (siehe Abbildung 2.7 (b)). Der Neigungswinkel wird dabei so gewählt, daß für einen vorgegebenen Bereich der Multilayerstrukturen die lokale Bragg-Bedingung  $\Theta_{in} - \Psi = \Theta_{out} + \Psi$  erfüllt ist und somit eine Verringerung der Effizienz durch Volumenbeugungseffekte vermieden wird.

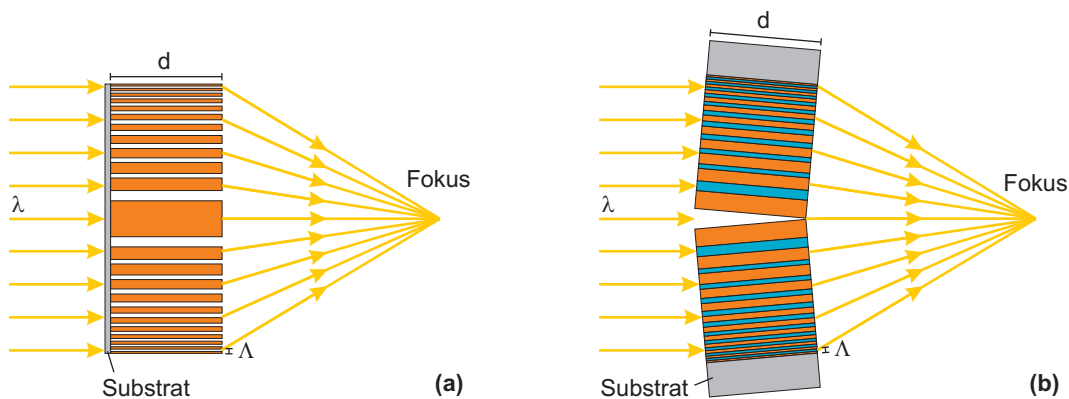


Abbildung 2.7: Vergleich des Strahlenganges bei (a) einer Linearzonenplatte mit hohem Aspektverhältnis und (b) einer geneigten, eindimensionalen Multilayer-Laue-Linse. Beide diffraktiven Optiken haben die äußere Zonenperiode  $\Lambda$  und eine Strukturdicke  $d$ .

Für die Herstellung von Multilayer-Laue-Linsen werden alternierend zwei verschiedene Materialien auf einem festem Substrat mittels DC-Magnetronspütern abgeschieden [132]. Die Abscheidung beginnt dabei mit der geringsten Strukturperiode. Als Materialien werden aufgrund der röntgenoptischen Eigenschaften bei harten Röntgenenergien meist Wolfram und Silizium eingesetzt. Um exakte Layerdicken und Strukturprofile zu erzeugen, müssen die Wachstumsrate und die Oberflächenrauigkeit der Einzelschichten sehr gering sein. Anschließend werden die Multilayer auf die optimale Dicke für eine vorgegebene Photonenenergie zugeschnitten und poliert [52]. Mit auf diese Weise hergestellten, eindimensionalen MLLs wurden Linienfokusbreiten von bis zu 16 nm bei einer Photonenenergie von 19.5 keV ( $\lambda = 0.064 \text{ nm}$ ) erreicht [53]. Die Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung betrug in diesem Fall ca. 30%. Um eine zweidimensionale Fokussierung zu realisieren werden zwei eindimensionale MLL-Paare mit Linienfokus im rechten Winkel zueinander auf der optischen Achse ausge-

richtet.

### 2.4.3 Photonensiebe

Photonensiebe (engl. Photon Sieves) sind Beugungsoptiken, die aus einer Vielzahl definiert angeordneter Lochblenden bestehen [18, 19, 56]. Dabei werden die Lochblenden auf den Zonenradien einer Fresnelschen Zonenplatte verteilt. Da die optische Weglänge der an den einzelnen Blenden gebeugten Wellenfronten von der Röntgenquelle bis zum Fokuspunkt aufgrund der Fresnelschen Zonenkonstruktion (siehe Abschnitt 2.4.1) gerade einem Vielfachen der Wellenlänge entspricht, kommt es zu konstruktiver Interferenz. Die scharfe äußere Begrenzung von Zonenplattenstrukturen führt zu periodischen Nebenmaxima im Fokuspunkt, welche die Schärfe und den Kontrast bei röntgenmikroskopischen Abbildungen beeinflussen. Diese können mit Hilfe eines Photonensiebes durch geeignete Lochradien, -Positionen und -Anzahl signifikant verringert werden. Somit werden unerwünschte Intensitäten außerhalb des Fokuspunktes eliminiert, was in einem gesteigerten Bild-Kontrast resultiert. Auf diese Weise kann auch die Intensitätsverteilung der verschiedenen Beugungsordnungen oder das Profil des Fokuspunktes dreidimensional angepasst werden.

Bei Fresnelschen Zonenplatten wird das Auflösungsvermögen der ersten Beugungsordnung durch die kleinste verwendete Strukturbreite bestimmt (siehe Abschnitt 2.4.1). Im Gegensatz dazu wird das Auflösungsvermögen bei Photonensieben nicht durch den kleinsten Lochblendenradius begrenzt, sondern ergibt sich aus der theoretischen Strukturbreite der zu Grunde liegenden Zonengeometrie. Theoretische Rechnungen haben gezeigt, daß die Lochradien um bis 50% größer als die entsprechenden Zonenstrukturen sein können ohne signifikanten Einfluß auf das Auflösungsvermögen zu nehmen [56]. Bisher wurden nur Photonensiebe für den sichtbaren und EUV-Wellenlängenbereich hergestellt [3, 6]. Mit Hilfe moderner Nanofabrikationsverfahren basierend auf Elektronenstrahlolithographie, wie sie bei der Herstellung von Zonenplatten zum Einsatz kommen, können Lochblenden mit Durchmessern von 20 – 40 nm für die Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung hergestellt werden. Die Ausrichtung derartiger Löcher in einer geeigneten Zonenkonstruktion erlaubt theoretisch räumliche Auflösungen von unter 10 nm. Diese Betrachtung lässt jedoch Volumenbeugungseffekte außer acht.

Der Nachteil von Photonensieben liegt in der geringen Beugungseffizienz der Röntgenoptiken. Durch den deutlich verringerten Flächenanteil im Vergleich zu einer Fresnelschen Zonenplatte sinkt die Photonenzahl im Fokuspunkt. Je nach Anzahl, Größe und Dichte der verwendeten Lochblenden sind die theoretischen Effizienzen von Photonensieben um mehr als eine Größenordnung geringer als bei herkömmlichen Zonenplattenoptiken [56], was zu einer starken Steigerung der Belichtungszeiten führt. Bei einem Einsatz im Vollfeld-Mikroskop wird dadurch zusätzlich eine signifikante Erhöhung der Strahlungsbelastung auf dem zu untersuchendem Objekt verursacht. Aus diesem Grund werden diese diffraktiven Elemente oft nur im Zusammenhang mit Röntgenquellen der vierten Generation (Freie Elektron Laser - FEL) genannt. Aufgrund der geringen praktischen Bedeutung dieser Beugungsoptiken wurden bisher

keine Photonensiebe für den Röntgenenergiebereich hergestellt.

## 2.5 Vergleich der Röntgenoptiken

In den vorangegangenen Beschreibungen wurden die einzelnen Röntgenoptiken nach dem jeweils genutzten physikalischen Effekt unterschieden. Dabei wurde ein Überblick über die vorhandenen Optiktypen gegeben. Aufgrund spezieller wissenschaftlicher und technischer Anforderung existiert eine Vielzahl an weiteren Varianten und Mischformen dieser Grundtypen. Der Einsatz einiger Röntgenlinsen ist durch defi-

Röntgenoptik	Energiebereich [keV]	Brennweite [mm]	Min. Fokus [nm]	Max. Effizienz [%]	Abbild.
Kombinierte refraktive Linsen	5 – 1000	10 – 100	47 (Punktfokus) $E_{ph} = 21 \text{ keV}$	80 – 90	ja
Totalreflexions-spiegelsysteme	0.1 – 20	> 100	25 (Linienfokus) $E_{ph} = 15 \text{ keV}$	35 – 60	ja (*)
Multischicht-spiegel	1 – 15	> 10	45 (Linienfokus) $E_{ph} = 24 \text{ keV}$	25	ja (*)
Monokapillaren	0.1 – 30	5 – 10	250 (Punktfokus) $E_{ph} = 15 \text{ keV}$	50	ja (*)
Polykapillaren	1 – 30	> 0.5	> 1000 (Punktfokus)	20	nein
Wellenleiter	0.1 – 15	—	50 (Punktquelle) $E_{ph} = 12.5 \text{ keV}$	< 1	nein
Multilayer-Laue-Linsen	12 – 20	0.5 – 10	18 (Linienfokus) $E_{ph} = 19.5 \text{ keV}$	< 40	ja
Transmissions-zonenplatten	0.1 – 20	0.5 – 10	12 – 15 (Punktfokus) $E_{ph} < 1 \text{ keV}$	5 – 30	ja

Tabelle 2.1: Vergleich wichtiger experimenteller Parameter von refraktiven, reflektiven und diffraktiven Röntgenoptiken. Die letzte Spalte zeigt, ob die jeweilige Optik die Abbesche Sinusbedingung bei der Abbildung von achsensenkrechten Flächenelementen erfüllt.

(\*) gilt nur für Punkte nahe der optischen Achse

nierte Randbedingungen begrenzt, andere decken eine große Bandbreite von Anwendungsmöglichkeiten ab. Dabei hat jede Röntgenoptik je nach Anwendungsgebiet ihre charakteristischen Eigenschaften. Oft werden dabei die optischen Parameter durch die technische Realisierbarkeit bei der Herstellung begrenzt. In Tabelle 2.1 werden die wichtigsten Parameter der zuvor beschriebenen Röntgenoptiken und röntgenoptischen

## 2 Optiken für die Röntgenmikroskopie

Systeme miteinander verglichen. Da derzeit keine Photonensiebe für Energien im Röntgenbereich existieren, sind diese vom Vergleich ausgenommen. Die angegebenen Werte wurden aus der aktuellen Literatur entnommen [22, 43, 49, 53, 77, 89, 112, 114] und verändern sich aufgrund rasant fortschreitender Entwicklungen bei der Herstellung von immer präziseren Röntgenoptiken stetig.

Für den Einsatz der beschriebenen Optiken als Objektive in einem Röntgenmikroskop müssen diese die Abbesche Sinusbedingung erfüllen, um Flächenelemente senkrecht zur optischen Achse ohne Bildfehler in der Bildebene abzubilden. Aus Tabelle 2.1 geht hervor, daß diese Voraussetzung nur im Fall der refraktiven und diffraktiven Röntgenoptiken ohne Einschränkungen gegeben ist. Mit Monokapillaren und Spiegelsystemen können nur Punkte sehr nahe der optischen Achse ohne Aberrationen abgebildet werden. Zusätzlich erfordern mikroskopische Untersuchungen ein hohes Auflösungsvermögen bei gleichzeitig hoher Effizienz der verwendeten Optik. Im weichen Röntgenbereich ( $E_{\text{photon}} < 2 \text{ keV}$ ) sind daher Zonenplatten die erste Wahl als Objektive für hochauflösende Röntgenmikroskope. Bei der Beschreibung der röntgenoptischen Eigenschaften von Zonenplatten wurden bisher Beugungseffekte, verursacht durch die dreidimensionale Ausdehnung der Zonenstrukturen, vernachlässigt (siehe Abschnitt 2.4.1). Diese Effekte gewinnen jedoch mit abnehmenden Zonenbreiten und steigendem Aspektverhältnis der Strukturen stark an Einfluß und müssen bei der Untersuchung der Beugungsvorgänge berücksichtigt werden. Dies führt zu sogenannten Volumenzonenplatten, wie sie im folgenden Abschnitt beschrieben werden. Die Realisierung derartiger Optiken ermöglicht eine weitere Steigerung des erzielbaren Auflösungsvermögens bei gleichzeitig hocheffizienten Röntgenoptiken für die Mikroskopie weicher und harten Röntgenstrahlung.

### 2.6 Volumenzonenplatten für Ortsauflösungen unter 10 nm

Wie in Abschnitt 2.4.1 gezeigt wurde, wird das Auflösungsvermögen einer Zonenplatte von der äußeren Zonenbreite und der zur Abbildung verwendeten Beugungsordnung bestimmt. Bisher wurde eine Auflösungssteigerung daher durch eine Verkleinerung der Strukturbreiten realisiert. Der Beugungswirkungsgrad ist dabei nach der geometrisch-optischen Theorie nicht von der Strukturbreite der Zonen abhängig. Für abnehmende Zonenbreiten und steigende Aspektverhältnisse der beugenden Strukturen verliert dieses Modell seine Gültigkeit, da die Beugungseigenschaften zunehmend durch Volumeneffekte in den dreidimensional ausgedehnten Zonenstrukturen beeinflusst werden. Elektrodynamische Rechnungen zeigen, daß in Abhängigkeit von der Wellenlänge die Beugungseffizienzen für effektive Zonenbreiten  $< 15 \text{ nm}$  stark abfallen (siehe Abschnitt 4.2). Um einen Effizienzeinbruch bei sinkenden Strukturbreiten entgegen zu wirken, muss die dreidimensionale Zonenform angepasst werden. Im Idealfall bildet jede Zone der Beugungsoptik den Ausschnitt eines Rotationsellipsoiden, in dessen Brennpunkten die Objekt- und Bildebene liegen. In Abbildung 2.8 sind ideale, ellipsoidale Volumenzonenplattenstrukturen schematisch dargestellt. In diesem Fall erfüllt jeder Punkt innerhalb des Zonenplattenvolumens die lokale Bragg-Bedingung

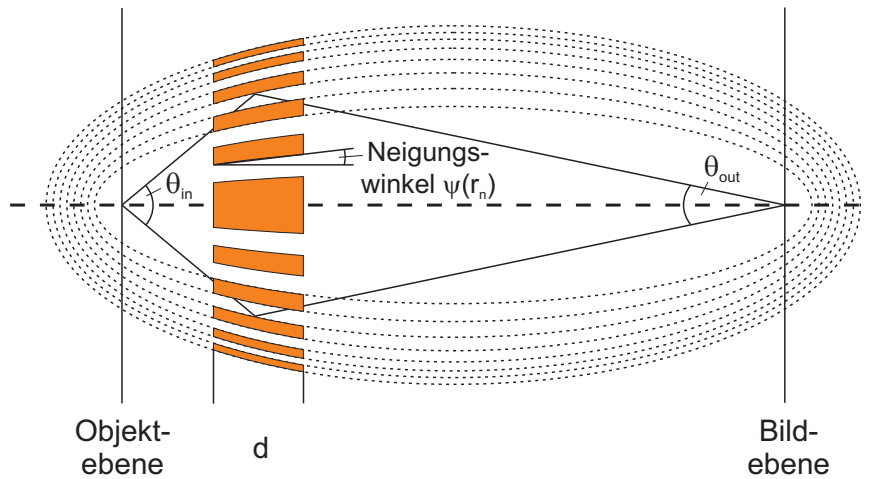


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung einer idealen, ellipsoidalen Volumenzonenplatte mit dem lokalen Neigungswinkel  $\Psi$  und einer Dicke  $d$ . Jeder Punkt innerhalb des Zonenplattenvolumens erfüllt die lokale Bragg-Bedingung  $\Theta_{in} - \Psi(r_n) = \Theta_{out} + \Psi(r_n)$ .

$\Theta_{in} - \Psi(r_n) = \Theta_{out} + \Psi(r_n)$ , wobei  $\Theta_{in}$  und  $\Theta_{out}$  den Einfallswinkel und Ausfallswinkel der Röntgenstrahlung und  $\Psi$  den lokalen Neigungswinkel der Zonen gegen die optische Achse beschreiben.

Die Herstellung derartiger Volumenzonenstrukturen gestaltet sich als technologisch anspruchsvoll. Bisher existieren zwei Modelle zur praktischen Realisierung von geneigten Zonenstrukturen. Ein möglicher Ansatz basiert auf der kontrollierten Bedampfung von Multischichten auf einem rotierenden konischen Draht. In der Vergangenheit wurde die sogenannte „Sputtered Slize Technik“ eingesetzt, bei der zwei Materialien alternierend auf einen runden Draht gesputtert wurden [27, 54, 93]. Durch Schneiden des Drahtes und anschließendes Polieren des Drahtes können somit im Prinzip beliebige Zonenplattendicken erzeugt werden. In der Praxis können die erforderlichen konischen Drähte nicht mit ausreichender Genauigkeit hergestellt werden, um die Neigungswinkel hoch präzise anzupassen. Des Weiteren müssen die Schichten über große Flächen homogen aufgedampft werden, um Störstellen in den sehr schmalen äußeren Zonenstrukturen zu vermeiden. Erhöhte Rauigkeiten zwischen den Zonen führen zu einer Absenkung der erzielbaren Beugungseffizienz [103]. Zusätzlich wird diese Herstellungsmethode durch die verfügbaren Polierverfahren für Nanostrukturen und Materialspannungen zwischen den Multischichten limitiert. Ein alternativer Ansatz zur Erzeugung von geneigten Zonenplattenstrukturen besteht in der Überlagerung von einzelnen Zonenplattenlagen. Der Neigungswinkel wird dabei durch abnehmende Zonenradien approximiert. Abbildung 2.9 zeigt eine derartige Multi-Lagen-Zonenplatte schematisch. Ein entsprechender Nanostrukturierungsprozeß zur Herstel-

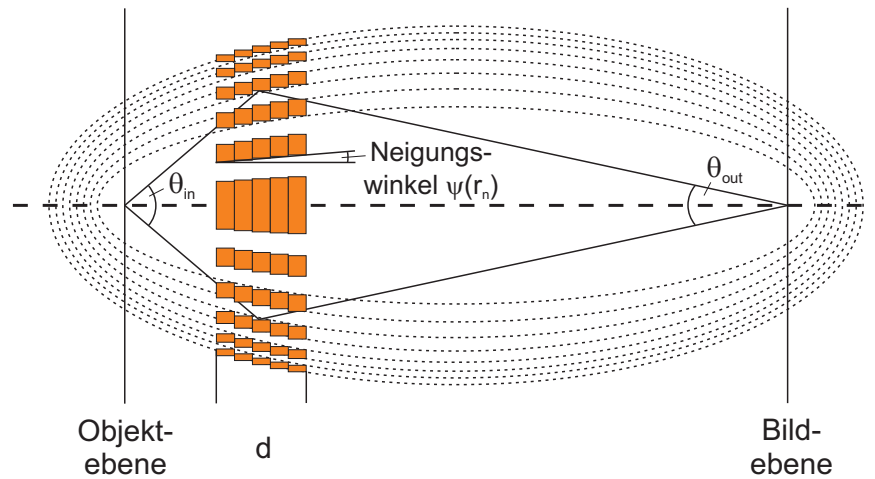


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung einer Multi-Lagen-Zonenplatte mit approximierten Neigungswinkel  $\Psi$  und einer Dicke  $d$ . Die Zonenplattenstrukturen erfüllen die lokale Bragg-Bedingung  $\Theta_{in} - \Psi(r_n) = \Theta_{out} + \Psi(r_n)$ .

lung von übereinandergelagerten Zonenplattenstrukturen wird in Kapitel 5 beschrieben.

Volumenzonenplatten bieten einen weiteren wichtigen Vorteil, der hier bisher nicht diskutiert wurde. Die dreidimensionale Form der Volumenzonenstrukturen kann so angepasst werden, daß die lokale Bragg-Bedingung  $\Theta_{in} - \Psi(r_n) = \Theta_{out,m} + \Psi(r_n)$  für ausgewählte hohe Beugungsordnungen  $m$  erfüllt wird. Dies hat zur Folge, daß die Beugungseffizienz in diesen Ordnungen signifikant erhöht wird. Da das Auflösungsvermögen von Zonenplatten indirekt proportional zur verwendeten Beugungsordnung skaliert, ermöglicht dies röntgenmikroskopische Abbildungen in hohen Ordnungen mit hocheffizienten Optiken und daraus resultierend eine Auflösungssteigerung ohne die Notwendigkeit der Prozessierung von immer kleineren Zonenstrukturen. Im folgenden Kapitel wird beschrieben, wie mittels des neuen optischen Konzeptes des BESSY II-Vollfeldmikroskopes erstmalig die röntgenmikroskopische Abbildung in hohen Beugungsordnungen realisiert wurde.

## **3 Zonenplatten basierte Röntgenmikroskopie**

In diesem Kapitel werden die prinzipiellen optischen Konzepte zur mikroskopischen Abbildung mit Zonenplatten vorgestellt. Anschließend wird der Aufbau und die Funktionsweise des Zonenplatten basierten Vollfeld-Röntgenmikroskops am BESSY II Speicherring des Helmholtz-Zentrums Berlin für Materialien und Energie erläutert. Dabei wird speziell auf die Weiterentwicklungen am röntgenoptischen Konzept des Transmissions-Mikroskops und die dafür verwendeten Komponenten eingegangen. Dabei wird die Energieauflösung gegenüber bisherigen Vollfeldröntgenmikroskopen durch die Trennung von Monochromatisierung und Objektbeleuchtung um mehr als eine Größenordnung gesteigert. Dies ermöglichte erstmalig die Demonstration von röntgenmikroskopischen Abbildungen in der dritten Beugungsordnung einer konventionellen Einzel-Lagen-Zonenplatte und somit eine signifikante Steigerung des Auflösungsvermögens des Vollfeldmikroskops. Um die stetige Weiterentwicklung von hochauflösenden, hocheffizienten Zonenplattenobjektiven für die Röntgenmikroskopie zu motivieren werden im letzten Abschnitt dieses Kapitels praktische röntgenmikroskopische Untersuchungen aus den Gebieten der Biologie und der Materialwissenschaften beschrieben, die am BESSY II-Röntgenmikroskop durchgeführt wurden.

### **3.1 Röntgenoptische Konzepte für die mikroskopische Abbildung**

Bei der röntgenmikroskopischen Abbildung mit Zonenplatten unterscheidet man zwei prinzipielle optische Konzepte: Vollfeld- und Raster-Röntgenmikroskope. Der Strahlengang in einem Vollfeld-Mikroskop (engl. Transmission X-ray Microscope - TXM) ähnelt dem konventioneller optischer Lichtmikroskope. Dabei wird das Objekt mittels einer fokussierenden Kondensoroptik mit der von der Röntgenquelle erzeugten Strahlung quasi-monochromatisch beleuchtet. Anschließend wird die Probe durch eine hinter dem Objekt angeordnete, hochauflösende, abbildende Optik auf einem geeigneten Röntgendetektor vergrößert dargestellt. Im Gegensatz dazu erzeugt im Raster-Röntgenmikroskop (engl. Scanning Transmission X-ray Microscope - STXM) eine fokussierende Nano-Optik, welche mit räumlich kohärenter Röntgenstrahlung beleuchtet wird, einen stark gebündelten Fokuspunkt auf dem Objekt. Zusätzlich wird ein geeigneter, absorbierender Mittenstopp im Strahlengang justiert, um die durch die Optik nicht fokussierte Strahlung der Quelle nahe der optischen Achse zu blocken. Durch Rastern des Objektes in dem erzeugten Fokuspunkt wird basierend auf der Objekt-

### 3 Zonenplatten basierte Röntgenmikroskopie

transmission durch einen dahinter befindlichen Detektor ein orts aufgelöstes Abbild der Probe erzeugt. Beide optischen Konzepte sind in Abbildung 3.1 dargestellt.

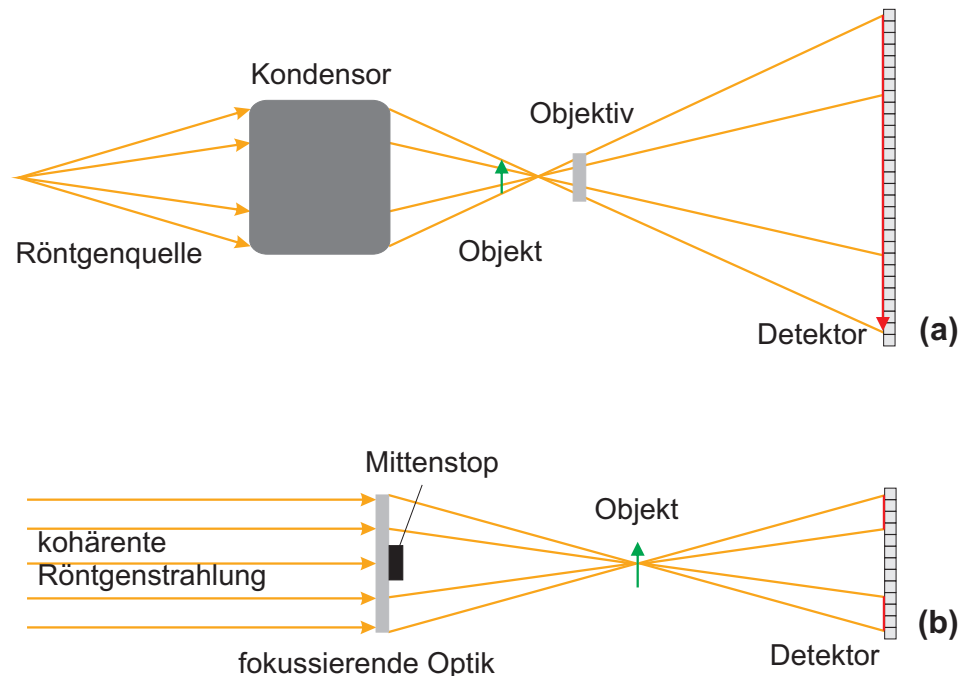


Abbildung 3.1: Röntgenoptisches Konzept und Strahlengang eines (a) Vollfeld- und (b) Raster-Röntgenmikroskopes.

Raster-Mikroskope bieten gegenüber dem Vollfeld-Konzept Vorteile bei der Reduzierung der auf das Objekt aufgetragenen Röntgendosis. Da im Vollfeld-Röntgenmikroskop im Gegensatz zum Strahlengang im Raster-Mikroskop die Photonen zunächst auf das Objekt und danach auf das Objektiv treffen und typische Effizienzen der verwendeten Objektivtypen im Bereich von 10% – 20% liegen, ist die Dosisbelastung des Objektes im STXM um bis zu eine Größenordnung geringer.

Für die beugungsbegrenzte Abbildung in Raster-Röntgenmikroskopen kann nur der räumlich kohärente Strahlungsanteil der Röntgenquelle genutzt werden. Dies hat zur Folge, daß Quellen mit sehr geringen Durchmessern und kleinen Divergenzen zur Beleuchtung eingesetzt werden müssen. In der Praxis bieten nur Synchrotronstrahlungsquellen an Elektronenspeicherringen ausreichend hohe spektrale Brillanzen bei geringen Quellgrößen. Vollfeld-Mikroskope werden hingegen mit geeigneten Kondensoroptiken auch an Labor-Röntgenquellen betrieben [11, 94].



## 3.2 Das Vollfeld-Röntgenmikroskop am BESSY II Elektronenspeicherring

Die beugungsbegrenzte Abbildung mit einem Vollfeld-Röntgenmikroskop (engl. Transmission X-ray Microscope - TXM) erfordert eine quasi-monochromatische Beleuchtung des zu untersuchenden Objektes [98]. In bisherigen Vollfeld-Mikroskopen wurden dazu großflächige Zonenplatten als monochromatisierende Kondensoren eingesetzt. Dadurch wurden jedoch geringe Energieauflösung im Bereich von  $E/\Delta E \leq 500$  erzielt [83]. Um die gewählte Photonenenergie aus dem Beugungsspektrum der Kondensorzonenplatte zu separieren, erfordert dieses Monochromator-Konzept eine Lochblende sehr nahe (Abstand ca.  $200 \mu\text{m}$ ) dem zu untersuchenden Objekt. Dies führt zu starken Einschränkungen bei Tomographie-Anwendungen mit flachen Probenhaltern, da kein ausreichender Raum für hohe Kippwinkel zur Verfügung steht (siehe Abschnitt 3.2.1).

Das neue Transmissionsröntgenmikroskop am BESSY II Elektronenspeicherring des Helmholtz-Zentrum Berlin nutzt ein weiterentwickeltes optisches Konzept, welches den Einsatz eines Undulators als Röntgenquelle und eines fokussierenden sphärischen Gitter-Monochromators (engl. Focusing Spherical Grating Monochromator - FSGM) beinhaltet. Dadurch wird eine um eine Größenordnung höhere Energieauflösung von bis zu  $E/\Delta E = 10^4$  erreicht [105] und somit die Voraussetzung für Anwendungen im Bereich der Spektromikroskopie erfüllt. Eine Kondensoroptik basierend auf einer elliptischen Monokapillare aus Glas in Verbindung mit einem absorbierendem Mittenstopp erzeugt die erforderliche Hohlkegel-Beleuchtung auf dem Objekt und ermöglicht durch den Verzicht auf Blenden im Objektbereich den Einsatz von flachen Objekthaltern für die Nano-Röntgentomographie.

Der folgende Abschnitt beschreibt das verwendete optische Konzept, den Aufbau und die Komponenten des BESSY II-Vollfeldmikroskopes. Im Anschluß werden die Durchführung und Ergebnisse von Experimenten zur mikroskopischen Abbildung in der dritten Beugungsordnung eines konventionellen Zonenplattenobjektives erläutert, welche erst durch die sehr hohe Energieauflösung basierend auf dem neuartigen optischen Konzept des BESSY II-TXM ermöglicht wurden. Abschließend werden ausgewählte, am BESSY II-TXM durchgeführte, röntgenmikroskopische Anwendungen aus den Bereichen der Biologie und Materialwissenschaften vorgestellt.

### 3.2.1 Aufbau des BESSY II-TXM

Das optische Konzept des neuen BESSY II Vollfeld-Röntgenmikroskops basiert auf der Trennung von Monochromatisierung und Objektbeleuchtung. In Abbildung 3.2 sind schematisch der Strahlengang und die röntgenoptischen Komponenten des BESSY II-TXM gezeigt. Als Strahlungsquelle für das Mikroskop wird der Undulator U41 des BESSY II Speicherrings eingesetzt, welcher sich durch einen hohen Photonenfluß für Röntgenenergien im Bereich des verwendeten Wasserfensters besonders eignet. Der kollimierte Röntgenstrahl des Undulators wird mittels eines fokussierenden, sphärischen Gitter-Monochromators (FSGM) monochromatisiert. Die mit diesem Monochromator-Konzept erzielbare Energieauflösung ermöglicht erstmalig auch spektromikros-

### 3 Zonenplatten basierte Röntgenmikroskopie

kopische Untersuchungen in einem Vollfeld-Röntgenmikroskop [39]. Der aus dem Austrittsspalt des Monochromators austretende, divergente, monochromatisierte Röntgenstrahl wird von einem achromatischen, elliptischen Kapillar-Kondensor durch Einfach-Reflexion im Inneren der Glas-Kapillare gebündelt. Ein an die Eingangsapertur des Kondensors angepasster, absorbierender Mittenstopp blockt dabei das vom FSGM ausgehende direkte Licht, um die erforderliche Hohlkegel-Beleuchtung zu erzeugen (siehe Abbildung 3.2). Diese führt dazu, daß die nullte Beugungsordnung nicht im Bildbereich abgebildet wird. Die Effizienz des Kapillar-Kondensors im Fokuspunkt in der Objektebene bei einer Photonenenergie von 0.5 keV wurde mit 80.5% gemessen [35]. Der Fo-

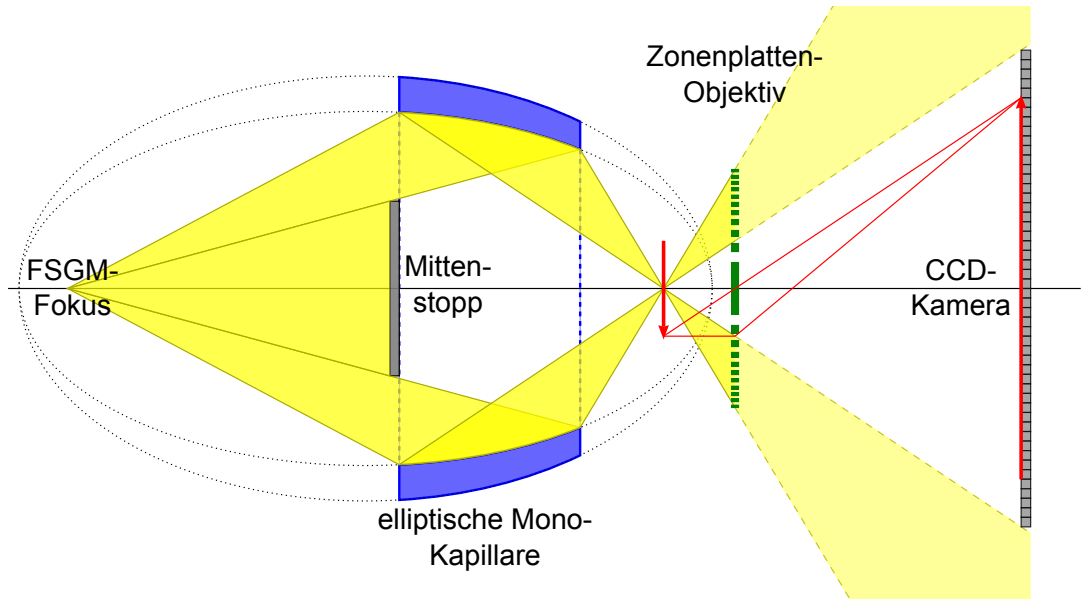


Abbildung 3.2: Optisches Setup des BESSY II Vollfeld-Röntgenmikroskopes. Der Kapillar-Kondensor bündelt die vom fokussierenden, sphärischen Gitter-Monochromator (FSGM) ausgehende Röntgenstrahlung und erzeugt in Verbindung mit einem absorbierendem Mittenstopp die erforderliche Hohlkegel-Beleuchtung. Das beleuchtete Objekt wird durch die Objektiv-Zonenplatte vergrößert auf der CCD-Kamera abgebildet [89].

kuspunkt, der durch die Kapillare geformt wird, ist mit  $\text{ca. } 0.62 \times 0.99 \mu\text{m}^2$  FWHM [35] zu klein, um das gesamte Objektfeld auszuleuchten. Um eine gleichmäßige Beleuchtung des gesamten Objektes zu realisieren, wird der Kondensor in der Ebene senkrecht zur optischen Achse spiralförmig gescannt.

Das verwendete Kondensor-Konzept bietet den Vorteil, daß die Photonenenergie ohne den Austausch oder eine Anpassung der Position der Kondensoroptik geändert werden kann und die Energieauflösung für die jeweilige Anwendung einstellbar ist.

Zusätzlich werden für die Monochomatisierung keine Blenden nahe dem zu untersuchenden Objekt benötigt. Somit können auch für flache Probenhalter hohe Kippwinkel im Rahmen von tomographischen Aufnahmen realisiert werden. Als Objekt-Stage dient dazu eine angepasste Kryo-Stage (*CompuStage*, FEI). Diese zeichnet sich durch eine hohe mechanische Genauigkeit und Temperaturstabilität aus und ermöglicht Kippwinkel im Bereich von  $\pm 80^\circ$ , sowie laterale Verfahrbereiche von  $\pm 1\text{mm}$  mit einer bidirektionalen Reproduzierbarkeit  $\leq 15\text{nm}$  [39]. Die Translationsachsen sind dabei so zur Drehachse gelagert, daß jeder Punkt der zu untersuchenden Probe auf die räumlich fixierte Kippachse gebracht werden kann. Zusammen mit einer geeigneten Steuerungssoftware liefert dies die Möglichkeit für eine automatisierte Aufnahme von Nano-Röntgentomogrammen.

Das Objekt wird durch das Zonenplatten-Objektiv stark vergrößert auf einen zweidimensionalen CCD-Detektor mit  $1340 \times 1300$  Pixeln abgebildet. Dabei bestimmt die äußere Zonenbreite der Beugungsoptik und die verwendete Beugungsordnung die erzielbare räumliche Auflösung bei der röntgenmikroskopischen Abbildung (siehe Abschnitt 2.4.1). Im Folgendem wird demonstriert, wie das Auflösungsvermögen durch die Abbildung in dritter Beugungsordnungen signifikant gesteigert werden kann.

#### 3.2.2 Demonstration der röntgenmikroskopischen Abbildung in dritter Beugungsordnung

Um die Möglichkeit der Abbildung in hohen Beugungsordnungen praktisch nachzuweisen und die damit verbundene Auflösungssteigerung zu ermitteln, wurden geeignete Objekte im BESSY-II-TXM mit einer konventionellen Einzel-Lagen-Zonenplatte in der dritten Beugungsordnung abgebildet. Das räumliche Auflösungsvermögen eines Röntgenmikroskopes wird durch die äußere Zonenbreite des Zonenplatten-Objektives und die zur Abbildung verwendete Beugungsordnung begrenzt. Eine Steigerung der räumlichen Auflösung wurde bisher stets durch die Verringerung der Zonenbreiten realisiert. Ein Ansatz, um die technischen Limitierungen bei der Nanofabrikation von immer kleiner werdenden Zonenstrukturen zu umgehen, besteht in der Verwendung von hohen Beugungsordnungen für die röntgenmikroskopische Abbildung. Dies führt zu einer signifikanten Erhöhung des Auflösungsvermögens, da die numerische Apertur ( $NA_m \approx m \cdot NA_1$ ) einer Zonenplatte mit der verwendeten Beugungsordnung  $m$  skaliert (vergleiche Abschnitt 2.4.1). Im Fall einer Anpassung der Kondensor- und Objektiv-Apertur wird die erreichbare räumliche Auflösung in der dritten Beugungsordnung bereits verdreifacht.

Da Zonenplatten stark chromatische Röntgenoptiken sind, muss die Energieauflösung  $E/\Delta E \geq m \cdot N$  betragen, wobei  $N$  die Zonenzahl beschreibt, um einen Verlust des Auflösungsvermögens durch chromatische Aberrationen zu verhindern [7]. Zusätzlich nimmt die Brennweite von Zonenplatten linear mit steigender Ordnungszahl  $m$  ab, so daß die Zonenzahl mindestens 500 betragen sollte, um praktisch zweckmäßige Brennweiten zu gewährleisten. Wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben, liefert das weiterentwickelte optische Konzept des BESSY II-TXM durch die Anwendung eines FSGMs zur Monochomatisierung der Röntgenstrahlung die erforderliche Energieauflösung. Um

### 3 Zonenplatten basierte Röntgenmikroskopie

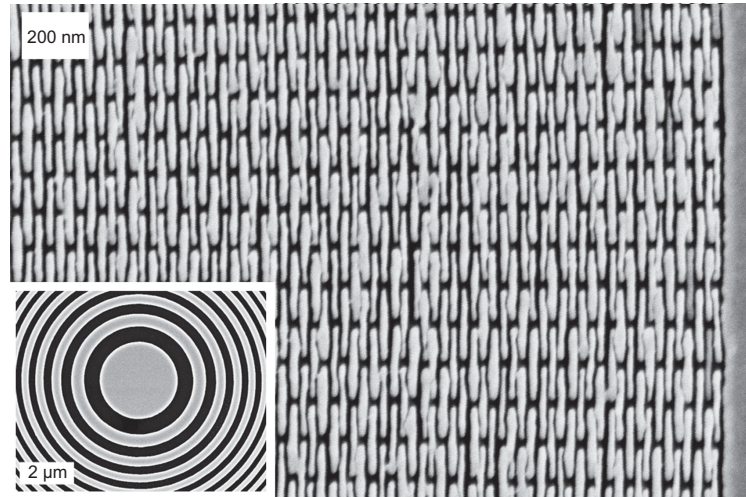


Abbildung 3.3: SEM-Aufnahmen einer 190 nm hohen Gold-Zonenplatte mit einer äußeren Zonenbreite von 25 nm [89]. Um die Stabilität der äußeren Zonen zu verstärken wurden Stützstege eingefügt. Links unten sind die inneren Zonenstrukturen dargestellt.

eine mögliche Steigerung des räumlichen Auflösungsvermögens durch die Abbildung mit hohen Beugungsordnungen zu untersuchen, wurden röntgenmikroskopische Aufnahmen von geeigneten Strukturen in der dritten Beugungsordnung angefertigt. Dazu wurde eine Gold-Zonenplatte mit einer äußeren Zonenbreite  $dr_n = 25$  nm, einem Durchmesser  $d = 90$  µm und  $N = 900$  Zonen als Objektiv genutzt [89]. Abbildung 3.3 zeigt SEM-Aufnahmen der Zonenstrukturen. Die Gold-Zonen des Zonenplatten-Objektives haben eine Höhe von 190 nm. Daraus ergeben sich nach elektrodynamischen Rechnungen bei der verwendeten Photonenenergie  $E = 700$  eV Beugungseffizienzen  $\eta_1 = 13.3\%$  in erster Beugungsordnung und  $\eta_3 = 0.57\%$  in dritter Beugungsordnung für minimale Zonenbreiten von 25 nm. Der maximale lokale Beugungswirkungsgrad in dritter Beugungsordnung für ungeneigte Zonenstrukturen beträgt 0.78% und wird bei einer Zonenhöhe von 125 nm erreicht. Bei dieser Photonenenergie kann eine Steigerung der Effizienz in hohen Beugungsordnungen nur durch gegen die optische Achse geneigte Zonen und die Einhaltung der lokalen Bragg-Bedingung erzielt werden (siehe Kapitel 4).

Als erstes Testobjekt wurde ein  $B_4C/Cr$  Multilayer (P. Gawlitza, S. Braun, IWS, Dresden) mit vier verschiedenen Perioden (Linienbreiten: 20.6; 17.5; 14.3 und 11.0 nm) bei einer Photonenenergie  $E = 700$  eV in der dritten Beugungsordnung abgebildet [89]. Um eine ausreichende Transmission zu gewährleisten wurde eine ca. 100 nm dicke Lamelle durch Dünnen mit fokussierten Ionenstrahlen hergestellt (Y. Ritz, GLOBALFOUNDRIES, Dresden). Die röntgenmikroskopischen Aufnahmen der verschiedenen Strukturbreiten sind in Abbildung 3.4 dargestellt. Die Röntgen-Bilder in Abbildung 3.4 wurden bei

### 3.2 Das Vollfeld-Röntgenmikroskop am BESSY II Elektronenspeicherring

einer Vergrößerung von 8250 auf einer CCD-Kamera mit  $20\text{ }\mu\text{m}$  Pixelgröße aufgenommen, woraus sich eine Pixelgröße von  $2.4\text{ nm} \times 2.4\text{ nm}$  in der Objektebene errechnet. Die Belichtungszeit betrug  $15.7\text{ s}$ . Die Multilayer-Strukturen mit Linienbreiten von  $20.6$  bis  $14.3\text{ nm}$  werden deutlich aufgelöst, während die  $11.0\text{ nm}$  Linien nur schwache Modulationen erkennen lassen.

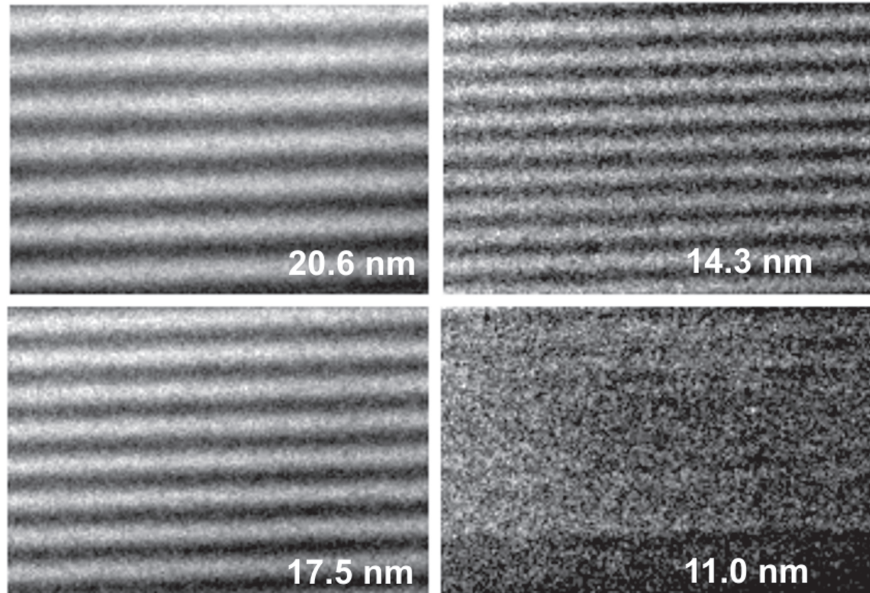


Abbildung 3.4: Röntgenmikroskopische Aufnahmen einer  $\text{B}_4\text{C}/\text{Cr}$  Multilayer-Struktur mit  $20.6$ ;  $17.5$ ;  $14.3$  und  $11.0\text{ nm}$  Linienbreite abgebildet in der dritten Beugungsordnung einer Gold-Zonenplatte mit  $dr_n = 25\text{ nm}$ . Die Belichtungszeit betrug  $15.7\text{ s}$  bei einer Photonenenergie von  $700\text{ eV}$  [89].

In weitergehenden Versuchen sollte das gesteigerte Auflösungsvermögen bei Abbildungen in hohen Beugungsordnungen für die Untersuchung von Proben aus dem Bereich der Halbleitertechnik angewendet werden. Dazu wurde ein Querschnitt von modernen, gestapelten Kupfer-Leiterbahnen, welche zuvor mittels FIB auf eine Dicke von ca.  $1.5\text{ }\mu\text{m}$  gedünnt wurden, bei einer Photonenenergie  $E = 900\text{ eV}$  in erster und dritter Beugungsordnung abgebildet. Die zugehörigen Belichtungszeiten betrugen  $5.2\text{ s}$  in erster und  $26\text{ s}$  in dritter Beugungsordnung. Abbildung 3.5 zeigt einen Vergleich dieser röntgenmikroskopischen Aufnahmen. Das betrachtete Objektfeld in Abbildung 3.5 (b) betrug  $4.2\text{ }\mu\text{m} \times 4.1\text{ }\mu\text{m}$ , wodurch sich eine Pixelgröße von  $3.1\text{ nm}$  ergibt. Im Vergleich zur ersten Beugungsordnung werden die Substrukturen in den gestapelten Kupfer-Leiterbahnen in dritter Beugungsordnung wesentlich deutlicher abgebildet. Speziell die Grenzschichten zwischen den Kupfer- und Dielektrika-Schichten werden nur in Abbildung 3.5 (b) ersichtlich. Um die Auflösungsgrenze für Abbildungen in dritter Beu-



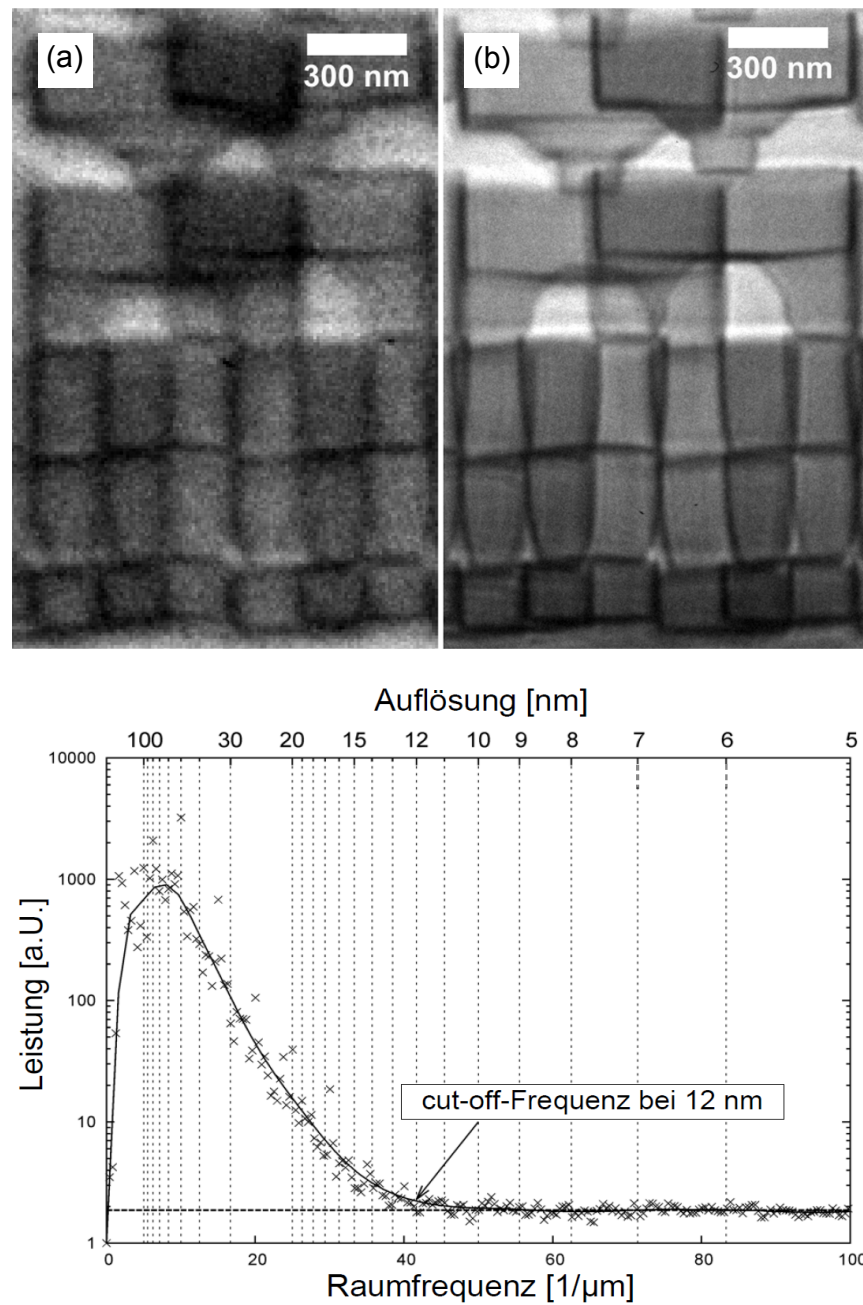


Abbildung 3.5: Oben: Röntgenmikroskopische Abbildung des Querschnitts eines modernen Kupfer-Leiterbahnen-Stacks aufgenommen in (a) erster und (b) dritter Beugungsordnung. Unten: Leistungsspektrum von Abbildung (b). Die ermittelte Cut-Off-Frequenz entspricht einer Strukturbreite von 12 nm [89].

gungsordnung exakt zu ermitteln, wurde ein Leistungsspektrum aus Abbildung 3.5 (b) berechnet (siehe unterer Teil Abbildung 3.5). Dabei wird die durch die Abbildung erhaltene Intensitätsverteilung mittels Fouriertransformation in ein Leistungsspektrum umgerechnet, in dem jeder Frequenz aus dem Fourier-Raum eine vom erzeugten Kontrast abhängige Leistung zugeordnet wird [84]. Die Leistung fällt mit der Raumfrequenz entsprechend des von den zugehörigen Strukturbreiten erzeugten Kontrastes. Oberhalb einer definierten Grenzfrequenz wird die Leistungskurve nur noch durch statistisches Rauschen beeinflusst, was einem Bildkontrast von 0% entspricht. Die zu dieser Grenzfrequenz (Cut-Off-Frequenz) zugehörige Strukturbreite liefert die Auflösungsgrenze des abbildenden optischen Systems. Die für Abbildung 3.5 (b) ermittelte Cut-Off-Frequenz korrespondiert mit einer minimalen Strukturbreite von 12 nm, was die Ergebnisse aus den Multilayer-Untersuchungen widerspiegelt. Mit dem verwendeten röntgenoptischen Aufbau können theoretisch mit der verwendeten Zonenplatte in dritter Beugungsordnung Linienbreiten bis zu 7.7 nm bei einer Photonenenergie von 900 eV aufgelöst werden. Die Abweichung zu dem gemessenen räumlichen Auflösungsvermögen lässt sich unter anderem auf Fehler in den Zonenlagen der verwendeten Optik zurückführen [125].

Der Vorteil bei der Verwendung hoher Beugungsordnungen für die Abbildung in Vollfeld-Röntgenmikroskopen ist die signifikante Steigerung des Auflösungsvermögens ohne die Notwendigkeit der Herstellung von immer kleineren, nanostrukturierten Zonenstrukturen. Dies bedarf jedoch einer hohen Energieauflösung, welche mit dem herkömmlichen Monochromatisierungs-Konzept basierend auf Zonenplattenkondensoren nicht erzielt werden kann. Nachteilig wirken sich die geringen Beugungseffizienzen der aktuell verwendeten Einzel-Lagen-Zonenplatten in hohen Beugungsordnungen aus. Da in einem Vollfeld-Röntgenmikroskop das Objektiv hinter der zu untersuchende Probe angeordnet ist und somit nur ein Bruchteil der vom Objekt transmittierten Photonen zur Abbildung genutzt werden, führen geringe Beugungseffizienzen und daraus resultierend gesteigerte Belichtungszeiten zu einer Erhöhung der Dosisapplikation im Objekt und somit zu möglichen Strahlenschäden. In einem STXM wiederum erhöht sich die Belichtungszeit in Abhängigkeit vom Beugungswirkungsgrad. Diese Mikroskope nutzen nur den vergleichsweise geringen kohärenten Photonenfluß und arbeiten sequentiell bei der Bildaufnahme. Zur Optimierung der Aufzeichnung der Bilddaten ist daher eine hohe Beugungseffizienz von großer Bedeutung. Im Kapitel 4 wird mit Hilfe elektrodynamischer Rechnungen gezeigt, daß geneigte Zonenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen durch die Einhaltung der lokalen Bragg-Bedingung eine signifikante Steigerung des Beugungswirkungsgrades in ausgewählten Beugungsordnungen zur Folge haben. Diese Volumenzonenplatten verbinden eine hohe Ortsauflösung mit einer gesteigerten Beugungseffizienz bei der Verwendung in hohen Beugungsordnungen.

#### 3.2.3 Anwendungen der Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung

Im praktischen Einsatz ist die applizierte Strahlendosis für viele röntgenmikroskopische Anwendungen ein limitierender Faktor. Um zu demonstrieren, welche Anwen-

### 3 Zonenplatten basierte Röntgenmikroskopie

dungsgebiete von hohen Effizienzen in hohen Beugungsordnungen bei gleichzeitiger Steigerung des Auflösungsvermögens durch Verwendung von Volumenzonenplatten profitieren, werden in diesem Abschnitt ausgewählte Untersuchungen aus der Biologie und den Materialwissenschaften beschrieben, die mit Hilfe konventioneller Zonenplatten am BESSY II-TXM durchgeführt wurden. Speziell für die Analyse von biolo-

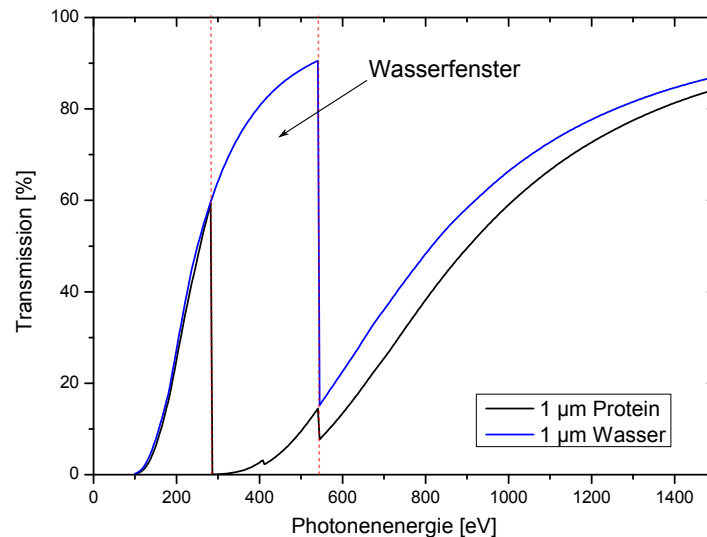


Abbildung 3.6: Transmission von Röntgenstrahlung im weichen Röntgenbereich durch eine 1  $\mu\text{m}$  dicke Protein- bzw. Wasserschicht. Eingezeichnet ist das sog. Wasserfenster zwischen den K-Absorptionskanten von Kohlenstoff und Sauerstoff.

gischen Proben eignet sich die Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung aufgrund guter Materialkontraste im Wellenlängenbereich des sog. Wasserfensters zwischen den K-Absorptionskanten von Sauerstoff ( $\lambda = 2.34 \text{ nm}$ ) und Kohlenstoff ( $\lambda = 4.38 \text{ nm}$ ). In Abbildung 3.6 ist die Transmission von weicher Röntgenstrahlung durch eine 1  $\mu\text{m}$  dicke Protein- bzw. Wasserschicht in Abhängigkeit von der Photonenenergie dargestellt. Der Energiebereich des Wasserfensters zeichnet sich durch einen hohen Absorptions- und Phasenkontrast von organischen Materialien gegenüber dem umgebenden Wasser aus und eignet sich somit sehr gut für röntgenmikroskopische Abbildungen von biologischen Proben in natürlicher Umgebung ohne chemisches Fixieren, Einfärben oder vorheriges Dünnen des Objektes. Durch Kryo-Fixieren der zu untersuchenden biologischen Proben werden Strahlenschäden minimiert, wodurch viele Abbildungen einer Probe angefertigt werden können [59, 103, 127]. Dies ermöglicht die Aufnahme von hochaufgelösten Röntgentomogrammen und somit eine dreidimensionale Rekonstruktion des Probenvolumens.

Ein Beispiel für eine biologische Anwendung der Mikroskopie im weichen Röntgen-



bereich sind Untersuchungen an Kryo-fixierten Maus-Adenokarzinom-Zellen (*H. Müller, J.G. McNally, NIH, Bethesda USA*). Dazu werden die Zellen auf einer dünnen Zellulose-Nitrat-Membran kultiviert, die von einem Gold-Grid getragen wird. Anschließend wurden die Zellen in einer ca. 10  $\mu\text{m}$  dicken Wasserschicht in flüssigem Ethanol schockgefroren, um Eiskristallbildung zu vermeiden. Abbildung 3.7 (b) zeigt rekonstruierte Schnitte eines Röntgentomogrammes dieser Proben. Das Tomogramm besteht aus 121 Projektionen welche unter Kippwinkeln von  $-60^\circ$  bis  $+60^\circ$  mit einer Schrittweite von  $1^\circ$  aufgenommen wurden. Die Belichtungszeiten betrugen dabei 2 – 24 s und wurden aufgrund der zunehmenden Probendicke für große Kippwinkel erhöht. Die 3D-Tomogramme der Kryo-fixierten Mauszellen zeigen eine Vielzahl an subzellularen Strukturen, die ohne jegliche Kontrastierung darstellbar sind. Unter anderen werden Zellkernmembranen, Zellkernporen, Nukleoli, endoplasmatisches Retikulum, Plasmamembranen, Vesikel, Lyosome und Mitochondrien in den röntgenmikroskopischen Abbildungen deutlich ersichtlich [106]. Zusätzlich konnten Strukturen innerhalb der Organellen identifiziert werden. Abbildung 3.7 (a) zeigt zum Vergleich eine klassische TEM-Präparation der Zellen basierend auf chemischem Fixieren, Trocknen und Schwermetallfärbung. Die tomographischen TXM-Aufnahmen zeigen alle wesentlichen Strukturen der TEM-Untersuchungen. Zusätzlich liefern die röntgenmikroskopischen Daten jedoch 3D-Informationen der unbehandelten Zellen ohne chemisches Fixieren oder Dünnen der Proben. Es zeigt sich, daß die Kryo-Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung die einzigartige Möglichkeit bietet, subzelluläre Feinstrukturen von biologischen Zellen in ihrer natürlichen Umgebung darzustellen.

Ein weiteres Anwendungsfeld der Röntgenmikroskopie liegt in der Untersuchung von hochentwickelten integrierten Schaltkreisen, wie sie in modernen Computerprozessoren eingesetzt werden. Im Gegensatz zu TEM-Aufnahmen können mit Hilfe der Röntgenmikroskopie aufgrund des hohen Durchdringungsvermögens der Photonen durch Materie eingebettete Strukturen mit element-spezifischem Kontrast abgebildet werden. Zusätzlich können Strahlenschäden in den dielektrischen Materialien (sog. low-k Materialien), in welche Kupfer-Leiterbahnen und -Schaltstrukturen eingebettet sind, signifikant verringert werden. Als Beispiel sollen Untersuchungen zur Stress-Migration in gestapelten Interconnect-Strukturen bestehend aus Kupferleiterbahnen getrennt durch ein Zwischenlagen-Dielektrikum (engl. Interlayer dielectrics - ILD) dienen [38, 133]. Zwischen den Kupferschichten ist ein Kupfer-Via als Kontaktierung eingefügt. Aus der Probe wurde mit Hilfe fokussierter Ionenstrahlen (engl. Focused Ion Beam - FIB) eine 1.5  $\mu\text{m}$  dicke Lamelle erzeugt, welche anschließend mit dem Vollfeld-Röntgenmikroskop am Speicherring BESSY II abgebildet wurde. Um den Einfluß der Stress-Migration zu untersuchen, wurden die Proben durch Heizen im Vakuum bei 175  $^\circ\text{C}$  belastet. Nach anfänglichen 50 h Heizzeit wurde nach je 5 h weiterem Heizens röntgen-mikroskopische Abbildungen angefertigt. Abbildung 3.8 zeigt Aufnahmen der Cu-ILD-Strukturen vor und nach 100-stündigem Heizen der Probe. Mit Hilfe der zeitabhängigen Untersuchungen wurde das Entstehen einer Fehlstelle in der Kupferleiterbahn unterhalb des Kupfer-Vias aufgrund der Stress-Migration nachgewiesen (siehe Abbildungen 3.8 (b) und (c)). Im Gegensatz zu früheren Elektro-Migrations-Untersuchungen [104, 107, 108] konnte bei der Stress-Migration keine Bewegung der

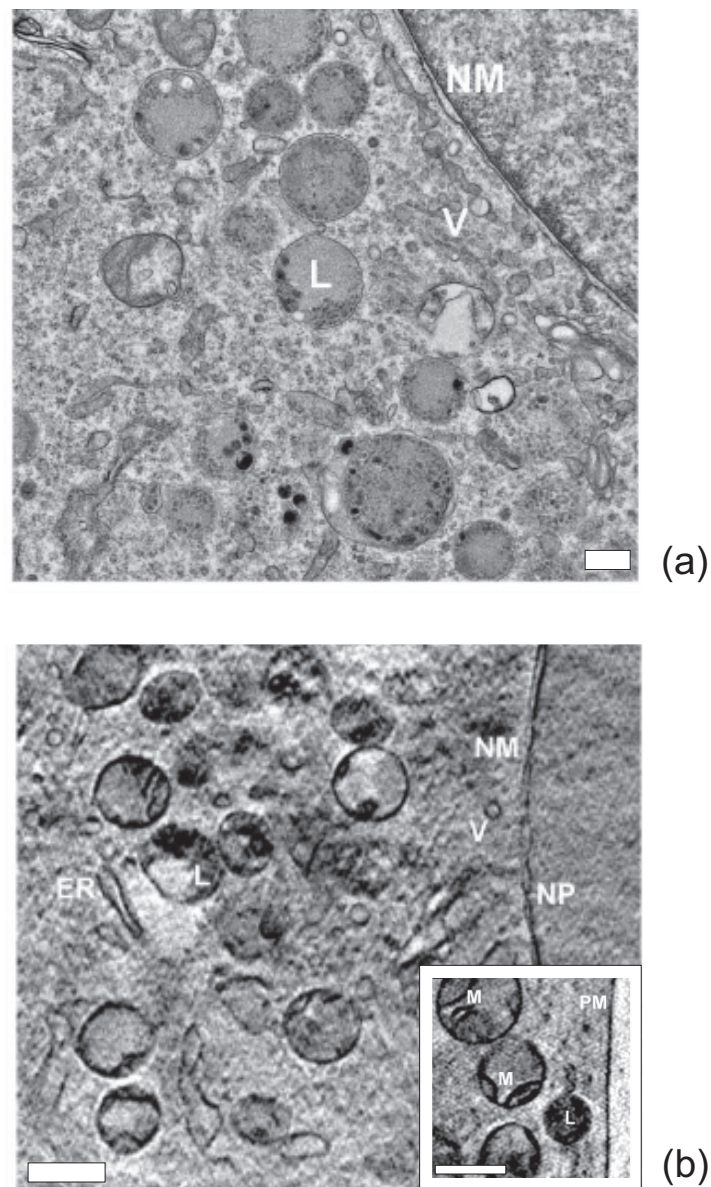


Abbildung 3.7: (a) TEM-Aufnahme von chemisch fixierten und (b) Schnitte aus einem rekonstruierten Röntgentomogramm von Kryo-fixierten Maus-Adenokarzinom-Zellen [106]. Gekennzeichnet sind Mitochondrien (M), Lyosome (L), endoplasmatisches Retikulum (ER), Vesikel (V), Plasmamembran (PM), Zellkernmembran (NM) und Zellkernporen (NP). Die Skalierungsbalken entsprechen in der TEM-Aufnahme  $0.39 \mu\text{m}$  und in den Schnitten des Röntgentomogrammes je  $0.78 \mu\text{m}$ .

### 3.2 Das Vollfeld-Röntgenmikroskop am BESSY II Elektronenspeicherring

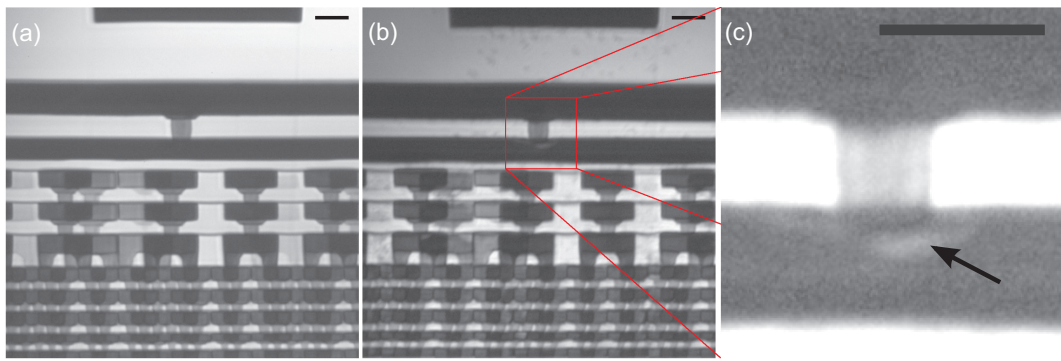


Abbildung 3.8: Röntgenmikroskopische Aufnahmen von gestapelten Cu-ILD-Schaltkreisstrukturen (a) nach 50- und (b) nach 100-stündigen Heizen des Objektes [38]. Die Probe wurde durch Erhitzen auf 175 °C belastet. Nach einer Heizzeit von 100 h ist eine Fehlstelle unterhalb der senkrechten Kupfer-Leiterbahn entstanden. Abbildung (c) zeigt einen vergrößerten Ausschnitt aus Abbildung (b). Die Skalierungsbalken entsprechen jeweils 500 nm.

Fehlstelle beobachtet werden. Um den genauen Ort der Fehlstelle innerhalb des untersuchten Volumens dreidimensional zu lokalisieren wurde die Probe tomographisch abgebildet. Dazu wurden Aufnahmen der Probe unter verschiedenen Kippwinkeln angefertigt. In Abbildung 3.9 sind Schnitte des rekonstruierten Tomographie-Volumens in verschiedenen Probentiefen dargestellt. Die tomographischen Daten bestätigen, daß

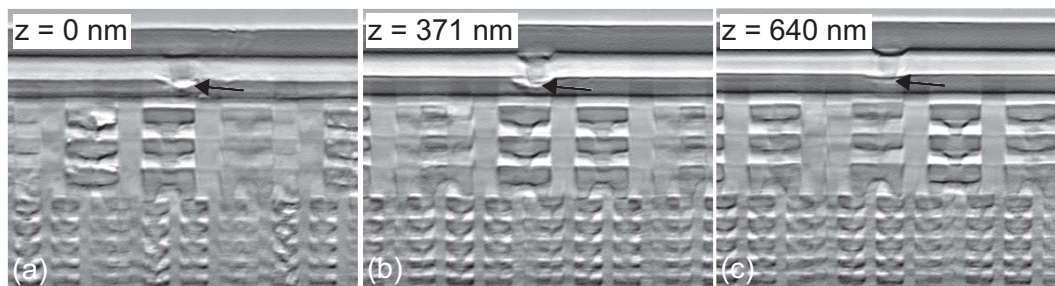


Abbildung 3.9: Schnitte durch das Volumen gestapelten Cu-ILD-Schaltkreisstrukturen mit einer durch thermische Stress-Migration entstandenen Fehlstelle [133]. Die Abbildungen (a), (b) und (c) sind Einzelbilder eines rekonstruierten Röntgentomogrammes.

sich die Fehlstelle an der Verbindungsstelle zwischen Via und Kupferleiterbahn ausge-

### *3 Zonenplatten basierte Röntgenmikroskopie*

bildet hat. Somit ermöglicht die Mikroskopie mit weicher Röntgenstrahlung hochauflösende Fehlstellenuntersuchungen in vergrabenen, passivierten Schichten durchzuführen.

Da moderne röntgenmikroskopische Anwendungen sowohl aus dem Bereich der Biologie als auch den Materialwissenschaften immer höhere Auflösungen verlangen, wird stetig an der Weiterentwicklung der verwendeten Röntgenoptiken gearbeitet. Wie im vorangegangenen Abschnitt demonstriert wurde, erlaubt die Verwendung von hohen Beugungsordnungen eine Steigerung der erzielbaren Ortsauflösung eines Röntgenmikroskopes. Dem entgegen steht ein starker Abfall der Beugungseffizienz von konventionellen Zonenplatten bei der Verwendung von hohen Ordnungen. Im Vollfeldröntgenmikroskop hängen die erforderlichen Belichtungszeiten und die auf die zu untersuchenden Objekte applizierte Strahlendosis direkt vom Wirkungsgrad des verwendeten Objektives ab. Daraus resultierend muss zur Vermeidung von Strahlenschäden die Effizienz in hohen Ordnungen gesteigert werden. Im folgendem Kapitel wird mittels elektrodynamischer Rechnungen gezeigt, daß der Einsatz von Volumenzonenplatten zu einer signifikanten Erhöhung der Effizienzen ausgewählter hoher Ordnungen führt. Die Realisierung derartiger geneigter Zonenplattenstrukturen bietet die Möglichkeit zur Herstellung von hocheffizienten Optiken mit sub-10 nm-Auflösungsvermögen bei röntgenmikroskopischen Abbildungen in hohen Beugungsordnungen.

## 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

Entscheidend für den Einsatz von hochauflösenden Zonenplatten in der Röntgenmikroskopie sind eine hohe numerische Apertur und eine hohe Effizienz der Röntgenoptiken. Letztere wird durch den Beugungswirkungsgrad der verwendeten Optik bestimmt, der das Verhältnis der Intensität in einer ausgewählten Beugungsordnung zur einfallenden Intensität beschreibt. Eine Maximierung der Beugungseffizienz führt somit zur Verringerung von Belichtungszeiten und in einem Vollfeld-Mikroskop zur Absenkung möglicher Strahlenschäden im Objekt [103]. Für die Optimierung der Zonenplattenparameter ist ein genaues Verständnis der Beugungseigenschaften und der limitierenden Faktoren notwendig, welche die Beugungseffizienz beeinflussen.

Für beugende Strukturen mit geringen Strukturhöhen kann der Beugungswirkungsgrad nach der geometrisch-optischen Theorie dünner Gitter (siehe Abschnitt 2.4.1) berechnet werden. Für zunehmende Aspektverhältnisse der beugenden Strukturen verliert diese Theorie jedoch ihre Gültigkeit, was eine elektrodynamische Betrachtung der Beugungsvorgänge erforderlich macht. Für die elektrodynamische Beschreibung von Beugungseffekten an periodischen Strukturen existieren die Lösungsansätze der Theorie gekoppelter Wellen [60, 78] und der Modaltheorie [23, 122]. Diese sind in ihren rigorosen Formen äquivalent [71]. In den folgenden Abschnitten wird die physikalische Beschreibung der Wellenausbreitung in Zonenplatten auf Basis der Theorie gekoppelter Wellen (engl. Coupled Wave Theory - CWT) dargestellt. Im Rahmen dieser Arbeit werden erstmals die Beugungseigenschaften von ausgedehnten Zonenplattenstrukturen mittels der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen (engl. Rigorous Coupled Wave Theory - RCWT) untersucht. Die elektrodynamischen Rechnungen liefern für ideale Optiken auf Grund von Volumeneffekten Beugungswirkungsgrade in hohen Ordnungen, die um ein Vielfaches über den Vorhersagen der klassischen Theorie liegen [37, 101, 109]. Des Weiteren wird der Einfluss möglicher Prozessierungsfehler auf diese Volumeneffekte bei der Herstellung geeigneter Zonenstrukturen untersucht. Im letzten Abschnitt dieses Kapitels werden Beugungseffizienzen in erster Beugungsordnung von ungeneigten Zonenstrukturen mit sehr hohen Aspektverhältnissen für multi-keV-Röntgenstrahlung betrachtet. Dazu werden Rechnungen zur Material- und Energieabhängigkeit des Beugungswirkungsgrades von Zonenplatten durchgeführt und Einflüsse von Herstellungsungenauigkeiten untersucht.

## 4.1 Theorie gekoppelter Wellen an Zonenplattenstrukturen

Zunächst wird eine Lösung der skalaren Wellengleichung für geneigte Zonenplattenstrukturen bestehend aus zwei periodisch angeordneten Materialien mit beliebigem Strich-Lücke-Verhältnis und vorgegebener Dicke gesucht. Dazu wird in der folgenden elektrodynamischen Betrachtung eine Beleuchtung der beugenden Strukturen durch eine ebene, senkrecht einfallende Welle vorausgesetzt. Für diesen Fall kann der elektrische Feldvektor auf eine Komponente  $E_y \equiv E$  reduziert werden. Die skalare, zeitunab-

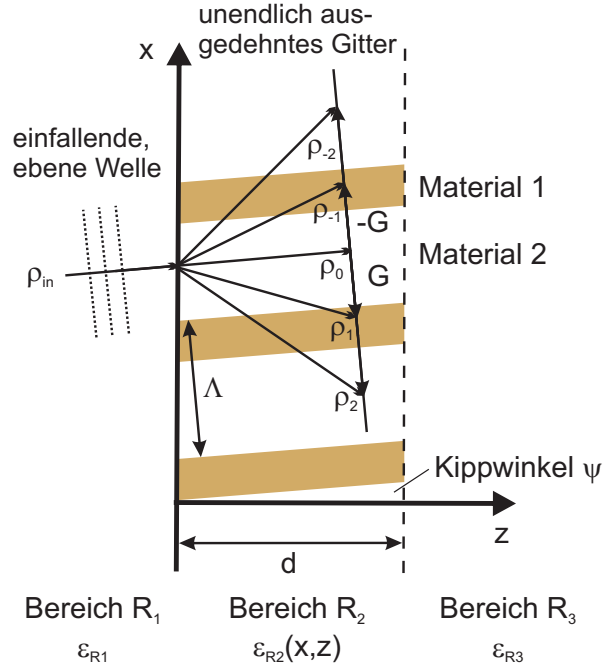


Abbildung 4.1: Lokaler Zonenplattenbereich angenähert durch ein Gitter aus den Materialien 1 und 2 mit der Periode  $\Lambda$  und einem Neigungswinkel  $\psi$ . Die einfallende, ebene Welle mit dem Wellenvektor  $\rho_{in}$  wird in die Wellenvektoren  $\rho_m$  mit  $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$  gebeugt.

hängige Wellengleichung monochromatischer Röntgenstrahlung in einem zweidimensionalen inhomogenen Medium lautet:

$$\nabla^2 E(x, z) + k_0^2 \varepsilon(x, z) E(x, z) = 0 \quad \text{mit} \quad k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}. \quad (4.1)$$

Dabei ist  $k_0$  die Wellenzahl und  $\varepsilon(x, z)$  beschreibt die ortsabhängige Dielektrizitätskonstante des Mediums. Polarisierungseffekte sollen in den folgenden Betrachtungen zunächst vernachlässigt werden [73]. Die Theorie gekoppelter Wellen liefert nur dann eine Lösung für Gleichung 4.1, wenn  $\varepsilon(x, z)$  in  $x$ -Richtung eine Periodizität besitzt. Für

#### 4.1 Theorie gekoppelter Wellen an Zonenplattenstrukturen

Zonenplatten mit großer Zonenzahl  $N$  variiert die Periode  $\Lambda(r) = 2dr_n(n) = \sqrt{\lambda f/n}$  der Zonen über kleine Bereiche nur wenig. Somit können innerhalb dieser Bereiche die Zonen als ein unendlich ausgedehntes Gitter mit konstanter, lokaler Gitterkonstante  $\Lambda(x)$  betrachtet werden [74]. In Abbildung 4.1 ist die Beugung einer ebenen Welle in einem solchen lokalen Zonenplattenbereich dargestellt. Die periodischen Zonenplattenstrukturen des Materials 1 und der Dicke  $d$  sind dabei um einen Winkel  $\psi$  gegen die optische Achse geneigt. In diesem Fall wird die lokale Zonenperiode durch  $\Lambda(r_n)/\cos\psi$  ersetzt. Die Dielektrizitätskonstanten der Bereiche  $R_1$  und  $R_3$  werden nur bei Berücksichtigung von Randeffekten an den Gittergrenzen im Rahmen der rigorosen Theorie berücksichtigt. Abbildung 4.2 zeigt die periodische Verteilung der Dielektrizitätskon-

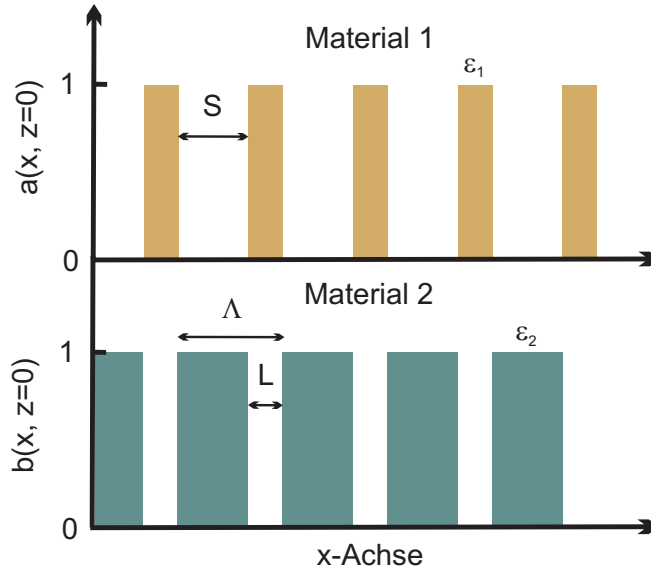


Abbildung 4.2: Systematische Darstellung der Verteilung der Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_1$  und  $\epsilon_2$  einer periodischen Zonenstruktur bestehend aus den Materialien 1 (oben) und 2 (unten). Die lokale Gitterperiode ist  $\Lambda = L + S$ .

stante eines Gitters mit vorgegeben Strich-Lücke-Verhältnis in einer Ebene. Die optischen Eigenschaften einer solchen Gitterstruktur werden beschrieben durch

$$\epsilon(x, z) = \epsilon_1 a(x, z) + \epsilon_2 b(x, z) \quad (4.2)$$

mit

$$a(x, z) = \frac{L}{L+S} + \frac{2L}{L+S} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \text{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) \cos(h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}) \quad (4.3)$$

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

und

$$b(x, z) = 1 - a(x, z), \quad |G| = \frac{2\pi}{\Lambda} \quad \text{und} \quad \mathbf{G} \cdot \mathbf{r} = \frac{2\pi}{\Lambda} [x \cos \psi - z \sin \psi] \quad (4.4)$$

wobei die mathematischen Funktionen  $a(x, z)$  und  $b(x, z)$  Fourierreihen mit dem Gittervektor  $\mathbf{G}$  beschreiben. Diese liefern die periodische Dielektrizitätskonstante des Gitters

$$\varepsilon(x, z) = \bar{\varepsilon} + \Delta\varepsilon \frac{2L}{L+S} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \text{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) \cos\left(h\mathbf{G} \cdot \mathbf{r}\right). \quad (4.5)$$

Die mittlere Dielektrizitätskonstante der Gitterstruktur wird beschrieben durch

$$\bar{\varepsilon} = \varepsilon_2 + (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) \frac{L}{L+S} = \tilde{n}_2^2 + (\tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_2^2) \frac{L}{L+S}. \quad (4.6)$$

Aus Gleichung 4.6 ergibt sich die Differenz  $\Delta\varepsilon$  der Dielektrizitätskonstanten der Materialien 1 und 2 in Abhängigkeit der Brechungsindizes zu

$$\Delta\varepsilon = \varepsilon_1 - \varepsilon_2 = \tilde{n}_1^2 - \tilde{n}_2^2. \quad (4.7)$$

Gleichung 4.7 ermöglicht die Berechnung der Dielektrizitätsfunktion  $\varepsilon(x, z)$  mit Hilfe der gebräuchlichen komplexen Brechungsindizes

$$\tilde{n}_1 = 1 - \delta_1 - j\beta_1 \quad \text{und} \quad \tilde{n}_2 = 1 - \delta_2 - j\beta_2, \quad (4.8)$$

welche direkt aus den tabellierten atomaren Streufaktoren  $f_1$  und  $f_2$  berechnet werden können [40, 41]. Einsetzen der periodischen Dielektrizitätskonstante aus Gleichung 4.5 in Gleichung 4.1 ergibt

$$\nabla^2 E(x, z) + k_0^2 \left[ \bar{\varepsilon} + \Delta\varepsilon \frac{2L}{L+S} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \text{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) \cos\left(h\mathbf{G} \cdot \mathbf{r}\right) \right] E(x, z) = 0. \quad (4.9)$$

Gleichung 4.9 ist eine lineare Differentialgleichung zweiter Ordnung mit periodischen Koeffizienten, deren allgemeine Lösung durch eine Summe ebener Wellen mit Wellenvektoren  $\rho_m$  und räumlich veränderlichen Amplituden  $A_m(z)$  gegeben ist:

$$E(x, z) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} E_m(x, z) = E_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} A_m(z) \exp(-j\rho_m \cdot \mathbf{r}) \quad (4.10)$$

$$\text{mit} \quad \rho_m \cdot \mathbf{r} = \rho_{m,x} x + \rho_{m,z} z.$$

Aus Gleichung 4.10 wird ersichtlich, daß die auf das Gitter einfallende ebene Wellenfront mit dem Wellenvektor  $\rho_0$  in eine Summe von gebeugten Wellen mit verschiedenen Ausbreitungsrichtungen zerlegt wird. Nach dem Vektor-Floquet-Theorem (K-vector-



#### 4.1 Theorie gekoppelter Wellen an Zonenplattenstrukturen

closure) [34] ergeben sich die Wellenvektoren  $\rho_m$  der m-ten Beugungsordnung zu:

$$\rho_m = \rho_0 + m \mathbf{G} \quad m = 0, \pm 1, \dots \quad (4.11)$$

Die (x,z)-Komponenten der einzelnen Wellenvektoren sind:

$$\rho_{m,x} = k \sin \theta_{in} + m G \cos \psi \quad (4.12)$$

$$\rho_{m,z} = k \cos \theta_{in} - m G \sin \psi, \quad (4.13)$$

wobei  $k = 2\pi\sqrt{\bar{\epsilon}}/\lambda$  die Wellenzahl der einfallenden Welle in einem Medium mit der mittleren Dielektrizitätskonstante  $\bar{\epsilon}$  ist. Gleichung 4.11 entspricht der Laue-Gleichung für Beugung an Kristallen. Daraus folgt, daß konstruktive Interferenz genau dann entsteht, wenn die Differenz der Wellenvektoren  $\rho_0 - \rho_m$  einem reziproken Gittervektor entspricht. Um die komplexen Amplituden  $A_m(z)$  der ebenen Wellen zu berechnen, wird die Lösung für  $E(x, z)$  aus Gleichung 4.10 in die Wellengleichung 4.9 eingesetzt:

$$\begin{aligned} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp(-j \rho_m \cdot \mathbf{r}) \left\{ \frac{d^2 A_m(z)}{dz^2} - 2j \rho_{m,z} \frac{dA_m(z)}{dz} - (\rho_{m,x}^2 + \rho_{m,z}^2) A_m(z) + k_0^2 \bar{\epsilon} A_m(z) \right. \\ \left. + k_0^2 \Delta \epsilon A_m(z) \frac{2L}{L+S} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \text{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) \cos(h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}) \right\} = 0 \end{aligned} \quad (4.14)$$

Nach Anwendungen der Additionstheoreme ergibt sich die cos-Funktion zu:

$$\cos(h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}) = \frac{\exp(j h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}) + \exp(-j h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r})}{2}. \quad (4.15)$$

Durch diese Umwandlung und mit

$$|\rho_m|^2 = \rho_{m,x}^2 + \rho_{m,z}^2 \quad (4.16)$$

ergibt sich Gleichung 4.14 zu:

$$\begin{aligned} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp(-j \rho_m \cdot \mathbf{r}) \left\{ \frac{d^2 A_m(z)}{dz^2} - 2j \rho_{m,z} \frac{dA_m(z)}{dz} - (|\rho_m|^2 - k_0^2 \bar{\epsilon}) A_m(z) \right. \\ \left. + k_0^2 \Delta \epsilon A_m(z) \frac{L}{L+S} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \text{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) [\exp(j h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}) + \exp(-j h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r})] \right\} = 0. \end{aligned} \quad (4.17)$$

Aus Gleichung 4.11 folgt:

$$\rho_{m \mp h} = \rho_0 + m \mathbf{G} \mp h \mathbf{G} = \rho_0 + (m \mp h) \mathbf{G} \quad (4.18)$$

oder

$$\exp(-j \rho_m \cdot \mathbf{r}) \exp(\pm j h \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}) = \exp(-j (\rho_m \mp h \mathbf{G}) \cdot \mathbf{r}) = \exp(-j m \mp h \cdot \mathbf{r}) \quad (4.19)$$

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

und Gleichung 4.17 kann umgeschrieben werden zu:

$$\sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp(-j \rho_m \cdot \mathbf{r}) \left\{ \frac{d^2 A_m(z)}{dz^2} - 2j \rho_{m,z} \frac{dA_m(z)}{dz} - (|\rho_m|^2 - k_0^2 \bar{\epsilon}) A_m(z) \right\} + k_0^2 \Delta \epsilon \frac{L}{L+S} \\ \times \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \operatorname{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) A_m(z) [\exp(-j \rho_{m-h} \cdot \mathbf{r}) + \exp(-j \rho_{m+h} \cdot \mathbf{r})] = 0. \quad (4.20)$$

Führt man für die Doppelsumme in Gleichung 4.20 eine Indexverschiebung der Form

$$\sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} A_m B_{m-h} = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} A_{m+h} B_m, \quad (4.21)$$

ein, wird eine Kopplung zwischen den Amplituden  $A_m(z)$  verschiedener Moden erkennbar. Diese Kopplung führt zu einem Energieaustausch zwischen den ebenen Wellen im Gitter. Somit ergibt sich Gleichung 4.20 zu:

$$\sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp(-j \rho_m \cdot \mathbf{r}) \left\{ \frac{d^2 A_m(z)}{dz^2} - 2j \rho_{m,z} \frac{dA_m(z)}{dz} - (|\rho_m|^2 - k_0^2 \bar{\epsilon}) A_m(z) \right\} \\ + k_0^2 \Delta \epsilon \frac{L}{L+S} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \operatorname{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) \exp(-j \rho_m \cdot \mathbf{r}) [A_{m+h}(z) + A_{m-h}(z)] = 0. \quad (4.22)$$

Zusammenfassen der Summen über  $m$  liefert ein System von Differentialgleichungen:

$$\sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp(-j \rho_m \cdot \mathbf{r}) \left\{ \frac{d^2 A_m(z)}{dz^2} - 2j \rho_{m,z} \frac{dA_m(z)}{dz} - (|\rho_m|^2 - k_0^2 \bar{\epsilon}) A_m(z) \right. \\ \left. + k_0^2 \Delta \epsilon \frac{L}{L+S} \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \operatorname{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) [A_{m+h}(z) + A_{m-h}(z)] \right\} = 0. \quad (4.23)$$

Diese Gleichungen werden erfüllt, wenn die Terme in geschweiften Klammern verschwinden. Es ergibt sich ein System von linearen gekoppelten Differentialgleichungen:

$$\frac{d^2 A_m(z)}{dz^2} - 2j \rho_{m,z} \frac{dA_m(z)}{dz} - (|\rho_m|^2 - k_0^2 \bar{\epsilon}) A_m(z) \\ + k_0^2 \frac{L}{L+S} \Delta \epsilon \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \operatorname{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) [A_{m-h}(z) + A_{m+h}(z)] = 0. \quad (4.24)$$

Dieses System von Differentialgleichungen zweiter Ordnung entspricht dem Differentialgleichungstyp eines physikalischen Pendels bei der Schwingung von durch Federn gekoppelter Massen. Daher wird die mathematische Entwicklung, welche zu Gleichung 4.24 führt, als Theorie gekoppelter Wellen bezeichnet. Zum Lösen des Differen-

tialgleichungssystems 4.24 können zwei verschiedene Vorgehensweisen genutzt werden. Da die Einfallswinkel bei der Beleuchtung optischer Elemente mit Röntgenstrahlung nahezu senkrecht sind und die Brechzahlen der verwendeten Materialien nahe an eins, kann zur Vereinfachung auf die Berechnung von rücklaufenden Wellen verzichtet werden [103]. In diesem Fall werden die Terme zweiter Ordnung  $d^2 A_m / dz^2 = 0$  gesetzt. Es entsteht ein Differentialgleichungssystem erster Ordnung und man spricht von der konventionellen Theorie gekoppelter Wellen (engl. Coupled Wave Theory - CWT). Wird hingegen das komplette Differentialgleichungssystem zweiter Ordnung bei der Berechnung der Beugungsamplituden betrachtet, so spricht man von der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen (engl. Rigorous Coupled Wave Theory - RCWT). Diese beinhaltet zusätzlich die Betrachtung der Randbedingungen der elektrischen und magnetischen Felder und den Einfluss von reflektierten Wellenanteilen. In den folgenden Abschnitten werden beide Lösungsansätze genauer betrachtet.

### 4.1.1 Matrixlösung der vereinfachten Wellengleichung

Das Gleichungssystem (Gleichung 4.24) lässt sich nach der zuvor beschriebenen Vereinfachung des CWT-Lösungsansatzes, in folgender Matrixform darstellen:

$$\frac{d\mathbf{A}(z)}{dz} = \underline{\underline{\mathbf{M}}} \mathbf{A}(z). \quad (4.25)$$

Dabei ist  $\underline{\underline{\mathbf{M}}}$  eine unendliche Matrix mit komplexen Elementen, die sowohl die optischen Parameter des Gitters als auch den Einfallswinkel der ebenen Welle beinhalten. Die Diagonalelemente der Matrix  $\underline{\underline{\mathbf{M}}}$  sind gegeben durch:

$$a_m = \frac{j(|\rho_m|^2 + k_0^2 \bar{\epsilon})}{2\rho_{m,z}} \quad (4.26)$$

und die Matrixkomponenten außerhalb der Diagonalen lauten

$$b_{mh} = \frac{j k_0^2 \Delta \epsilon L}{2\rho_{m,z}(L+S)} \operatorname{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) \quad (4.27)$$

mit den Indizes

$$m = \dots, -2, -1, 0, 1, 2, \dots \text{ und } h = 1, 2, \dots; h \neq 0. \quad (4.28)$$

Die unendliche Matrix  $\underline{\underline{\mathbf{M}}}$  kann nur durch eine Begrenzung der Fourierkomponenten der betrachteten Gitterstruktur auf eine endliche Anzahl  $h_{max}$  numerisch gelöst werden. Somit besteht die Matrix aus  $(2h_{max} + 1) \times (2h_{max} + 1)$  komplexen Elementen. Das Matrixsystem 4.25 wird mathematisch durch die Berechnung der Eigenwerte  $\chi_h$  und der Eigenvektoren der Matrix  $\underline{\underline{\mathbf{M}}}$  gelöst. Der Ansatz dieser Lösung lautet

$$A_m(z) = \sum_h q_{mh} [c_h \exp(\chi_h z)], \quad (4.29)$$

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

wobei  $q_{mh}$  die Komponenten der Matrix  $\underline{\underline{\mathbf{Q}}}$  beschreiben, welche sich aus den Eigenvektoren aufbaut. Aus Gleichung 4.29 ergibt sich am Rand des Gitters mit der Zonenhöhe  $z = 0$  folgendes lineares Gleichungssystem:

$$\mathbf{A}(z = 0) = \underline{\underline{\mathbf{Q}}} \mathbf{C}. \quad (4.30)$$

Dabei beschreibt  $\mathbf{C}$  den Vektor der unbekannten Koeffizienten  $c_h$ . Da das Gitter mit einer ebenen Welle der Form

$$E_{inc} = E_0 \exp(-j \rho_0 \cdot \mathbf{r}), \quad (4.31)$$

beleuchtet wird, ergibt sich als Randbedingung, dass alle Amplituden außer die der 0-ten Ordnung gleich Null sind. Durch Normieren der Amplitude der 0-ten Ordnung folgt:

$$A_0(z = 0) = 1 \quad \text{und} \quad A_m(z = 0) = 0 \quad \text{für} \quad m \neq 0 \quad \text{bei} \quad z = 0. \quad (4.32)$$

Somit lässt sich der Vektor  $\mathbf{C}$  aus den Randbedingungen und der inversen Matrix  $\underline{\underline{\mathbf{Q}}}^{-1}$  berechnen:

$$\mathbf{C} = \underline{\underline{\mathbf{Q}}}^{-1} \mathbf{A}(z = 0). \quad (4.33)$$

Mit Hilfe eines Gaußschen Eliminationsverfahrens lassen sich die unbekannten Koeffizienten  $c_h$  im Gleichungssystem 4.33 ermitteln. Einsetzen der Koeffizienten in Gleichung 4.29 liefert die komplexen Amplituden  $A_m(z)$  aller Beugungsordnungen innerhalb der Zonenstrukturen in Abhängigkeit von der Zonenhöhe  $z$ . Die Beugungseffizienzen der einzelnen Beugungsordnungen können anschliessend aus den normalisierten Amplituden durch Multiplikation mit deren komplex-konjugierten  $A_m^*(z)$  berechnet werden:

$$\eta_m(z) = A_m(z) A_m^*(z). \quad (4.34)$$

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Rechnungen zur konventionellen Theorie gekoppelter Wellen wurde das Programm TGWIL [101] verwendet, welches einen entsprechenden CWT-Algorithmus zur Bestimmung des Beugungswirkungsgrades einer ausgesuchten Beugungsordnung in Abhängigkeit von den Gitter- und Beleuchtungsparametern beinhaltet.

##### 4.1.2 Rigorose Theorie gekoppelter Wellen

Im Vergleich zu der zuvor beschriebenen, konventionellen Theorie gekoppelter Wellen werden in der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen (RCWT) die Ableitungen zweiter Ordnung in Gleichung 4.24 im Lösungsansatz nicht eliminiert. Dadurch werden auch Beugungseffekte an den Grenzen der Zonenplatte und der Einfluss von reflektierten Wellenanteilen berücksichtigt. Mathematisch ist es möglich lineare Differentialgleichungssysteme zweiter Ordnung der Dimension  $(n \times n)$  wie Gleichung 4.24 in  $(2n \times 2n)$  Differentialgleichungssysteme erster Ordnung zu überführen. Dazu werden

#### 4.1 Theorie gekoppelter Wellen an Zonenplattenstrukturen

die Zustandsgrößen

$$A_{1,m}(z) = A_m(z) \quad (4.35)$$

und

$$A_{2,m}(z) = \frac{dA_m(z)}{dz} \quad (4.36)$$

definiert. Dies liefert zwei unendliche Differentialgleichungssysteme erster Ordnung

$$\frac{dA_{1,m}(z)}{dz} = A_{2,m}(z) \quad (4.37)$$

und

$$\begin{aligned} \frac{dA_{2,m}(z)}{dz} = & 2j\rho_{m,z} A_{2,m}(z) + (|\rho_m|^2 - k_0^2 \bar{\epsilon}) A_{1,m}(z) - k_0^2 \frac{L}{L+S} \Delta \epsilon \\ & \times \sum_{h=1,2,3,\dots}^{\infty} \text{sinc}\left(h\pi \frac{\Delta x_{diff}}{\Lambda}\right) \text{sinc}\left(h\pi \frac{L}{L+S}\right) [A_{1,m-h}(z) + A_{1,m+h}(z)]. \end{aligned} \quad (4.38)$$

Mit  $\mathbf{A}'_1 = d\mathbf{A}(z)/dz$  und  $\mathbf{A}'_2 = d^2 \mathbf{A}(z)/dz^2$  können die einzelnen Zustandsgleichungen in Matrixform dargestellt werden:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{A}'_1 \\ \mathbf{A}'_2 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \underline{\mathbf{O}} & \underline{\mathbf{1}} \\ \underline{\mathbf{B}} & \underline{\mathbf{C}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{A}_1 \\ \mathbf{A}_2 \end{bmatrix}. \quad (4.39)$$

Auch in diesem Fall wird eine endliche Anzahl von Fourierkomponenten der betrachteten Gitterstruktur  $h_{max}$  angenommen. Dies liefert eine  $(2h_{max} + 1) \times (2h_{max} + 1)$  Matrix der Form

$$\begin{bmatrix} \vdots \\ A'_{1,m} \\ A'_{1,0} \\ A'_{1,-1} \\ \vdots \\ A'_{2,1} \\ A'_{2,0} \\ A'_{2,-1} \\ \vdots \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots \\ \ddots & 0 & 0 & 0 & \ddots & 1 & 0 & 0 & \ddots \\ \ddots & 0 & 0 & 0 & \ddots & 0 & 1 & 0 & \ddots \\ \ddots & 0 & 0 & 0 & \ddots & 0 & 0 & 1 & \ddots \\ \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots \\ \ddots & a_m & b_{1,1} & 0 & \ddots & c_m & 0 & 0 & \ddots \\ \ddots & b_{mh} & a_0 & b_{0,1} & \ddots & 0 & c_0 & 0 & \ddots \\ \ddots & 0 & b_{-1,1} & a_{-1} & \ddots & 0 & 0 & c_{-1} & \ddots \\ \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \vdots \\ A_{1,m} \\ A_{1,0} \\ A_{1,-1} \\ \vdots \\ A_{2,1} \\ A_{2,0} \\ A_{2,-1} \\ \vdots \end{bmatrix}. \quad (4.40)$$

Aus Gleichung 4.24 ergeben sich die Matricelemente zu

$$b_{mm} = a_m = (|\rho_m|^2 - k_0^2 \bar{\epsilon}), \quad (4.41)$$

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

$$b_{mh} = \frac{k_0^2 L \Delta \varepsilon}{L + S} \operatorname{sinc} \left( h \pi \frac{L}{L + S} \right) \quad ; \quad m \neq h \quad (4.42)$$

und

$$c_m = 2j \rho_{m,z}. \quad (4.43)$$

Die Matrix in Gleichung 4.40 kann mit Hilfe der zugehörigen Eigenwerte und Eigenvektoren gelöst werden. Der Lösungsansatz lautet

$$A_m(z) = \sum_h q_{mh} [d_h \exp(\chi_h z)]. \quad (4.44)$$

Dabei ist  $q_{mh}$  das  $h$ -te Element der Reihe, welche sich aus den Eigenvektoren der  $m$ -ten Wellen ergeben.  $\chi_h$  beschreibt den korrespondierenden  $h$ -ten Eigenwert. Die unbekannten Konstanten  $d_h$  und die Amplituden der vorwärts- und rückwärtsgebeugten Wellen können mit Hilfe der Randbedingungen der elektrischen und magnetischen Felder an den beiden Grenzen  $z = 0$  und  $z = d$  ermittelt werden. Das elektrische Feld im Bereich  $R_2$  (siehe Abbildung 4.1) ergibt sich nach Gleichung 4.10 zu

$$E_{R_2} = \sum_{m=-\infty}^{\infty} A_m(z) \exp[-j(\rho_{m,x}x + \rho_{R_2,m,z}z)], \quad (4.45)$$

mit

$$\rho_{m,x} = \frac{2\pi\sqrt{\varepsilon_{R_1}}}{\lambda} \sin \theta_{in} + m G \cos \psi \quad (4.46)$$

und

$$\rho_{R_2,m,z} = \frac{2\pi\sqrt{\varepsilon_{R_2}}}{\lambda} \sin \theta'_{in} - m G \cos \psi, \quad (4.47)$$

wobei  $\theta'_{in}$  den Brechungswinkel innerhalb des Bereiches beschreibt. Einsetzen des Lösungsansatzes für die normalisierten Amplituden aus 4.44 in Gleichung 4.45 liefert

$$E_{R_2} = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_h q_{mh} [d_h \exp(\chi_h z)] \exp[-j(\rho_{m,x}x + \rho_{R_2,m,z}z)]. \quad (4.48)$$

Das elektrische Feld in Bereich  $R_1$  (Abbildung 4.1) wird durch eine Überlagerung der einfallenden, ebenen Welle  $\exp[-j(\rho_{0,x}x + \zeta_{R_1,0,z}z)]$  und der rückgestreuten Wellen mit den Amplituden  $R_m$  beschrieben:

$$E_{R_1} = \exp[-j(\rho_{0,x}x + \zeta_{R_1,0,z}z)] + \sum_{m=-\infty}^{\infty} R_m \exp[-j(\rho_{m,x}x - \zeta_{R_1,m,z}z)], \quad (4.49)$$

mit

$$\zeta_{R_1,m,z} = \sqrt{4\pi^2\varepsilon_{R_1}/\lambda^2 - \rho_{R_2,m,z}^2}. \quad (4.50)$$

Die entgegengesetzte Ausbreitungsrichtung der reflektierten Wellen gegenüber der einfallenden Wellenfront wird hierbei durch das negative Vorzeichen der Wellenvektoren  $-\zeta_{R_1,m,z}$  berücksichtigt. Analog zu Gleichung 4.48 ergibt sich das elektrische Feld

#### 4.1 Theorie gekoppelter Wellen an Zonenplattenstrukturen

im Bereich  $R_3$  bei  $z = d$  aus den Amplituden  $T_m$  der vorwärts gebeugten Wellen:

$$E_{R_3} = \sum_{m=-\infty}^{\infty} T_m \exp[-j(\rho_{m,x}x + \zeta_{R_3,m,z}(z - d))] \quad (4.51)$$

mit

$$\zeta_{R_3,m,z} = \sqrt{4\pi^2\epsilon_{R_3}/\lambda^2 - \rho_{R_2,m,z}^2}. \quad (4.52)$$

Die elektromagnetischen Randbedingungen erfordern, daß die elektrischen und magnetischen Felder über die Grenzen der drei definierten Bereiche  $R_1$  bis  $R_3$  stetig sind. Da nur die y-Komponente des elektrischen Feldes betrachtet wird (siehe Abschnitt 4.1), muss das elektrische Feld bei  $z = 0$  und  $z = d$  tangential sein. Daraus folgt:

$$E_{R_1} = E_{R_2}, \quad (4.53)$$

und

$$E_{R_2} = E_{R_3}. \quad (4.54)$$

Das magnetische Feld kann aus der Maxwell Gleichung  $\nabla \times \mathbf{E} = -\partial \mathbf{B}/\partial t$  abgeleitet werden. Die tangentielle Komponente von  $H$  liegt daher in  $x$ -Richtung. Es ergibt sich  $H_x \propto \partial E_y / \partial z$  und somit für das tangentielle  $H$ -Feld bei  $z = 0$ :

$$\frac{\partial E_{R_1}}{\partial z} = \frac{\partial E_{R_2}}{\partial z} \quad (4.55)$$

und bei  $z = d$ :

$$\frac{\partial E_{R_2}}{\partial z} = \frac{\partial E_{R_3}}{\partial z}. \quad (4.56)$$

Die vier Randbedingungen 4.53 bis 4.56 führen zum folgenden Satz von Gleichungen:

$$R_m + \delta_{m0} = \sum_h d_h q_{mh}, \quad (4.57)$$

$$T_m = \sum_h d_h q_{mh} \exp[(\chi_h - j\rho_{R_2,m,z})d] \quad (4.58)$$

$$\zeta_{R_1,m,z} (R_m - \delta_{m0}) = \sum_h d_h q_{mh} (j\chi_h + \rho_{R_2,m,z}) \quad (4.59)$$

$$\zeta_{R_3,m,z} T_m = \sum_h d_h q_{mh} (j\chi_h + \rho_{R_2,m,z}) \exp[(\chi_m - j\rho_{R_2,m,z})d], \quad (4.60)$$

wobei  $\delta_{m0}$  die Kronecker-Delta-Funktion beschreibt. Elimination von  $T_m$  und  $R_m$  in den Gleichungen 4.57–4.60 führt auf ein lineares Gleichungssystem aus den zwei Gleichungen

$$2\delta_{m0}\zeta_{R_1,m,z} = \sum_h c_h q_{mh} (-j\chi_h - \rho_{R_2,m,z} + \zeta_{R_1,m,z}) \quad (4.61)$$

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

und

$$0 = \sum_h c_h q_{mh} (j\chi_h + \rho_{R_2,m,z} - \zeta_{R_3,m,z}) \exp[\chi_h d], \quad (4.62)$$

welches mittels eines Gaußschen Eliminationsverfahrens gelöst werden kann. Einsetzen der so berechneten Koeffizienten  $c_h$  in die Gleichungen 4.57 und 4.59 liefert die reflektierten und transmittierten Amplituden  $R_m$  und  $T_m$ . Da die Amplitude der einfallenden, ebenen Welle auf eins normalisiert wurde, ergeben sich die reflektierten und transmittierten Beugungseffizienzen  $m$ -ter Ordnung in den Bereichen  $R_1$  und  $R_3$  mit Hilfe der zeitlich-gemittelten Leistungsdichte, beschrieben durch den Realteil des komplexen Poynting-Vektors zu:

$$\eta_{R_1,m} = \text{Re}(\zeta_{R_1,m,z} / \zeta_{R_1,0,z}) R_m R_m^* \quad (4.63)$$

und

$$\eta_{R_3,m} = \text{Re}(\zeta_{R_3,m,z} / \zeta_{R_3,0,z}) T_m T_m^*. \quad (4.64)$$

Die RCWT-Berechnungen im Rahmen dieser Arbeit wurden auf Basis des Programmes *GSolver* durchgeführt. Das Programm beinhaltet einen Algorithmus zur Lösung der Maxwell Gleichungen von linearen Gitterstrukturen im Wellenlängenbereich des sichtbaren Lichtes nach der zuvor beschriebenen rigorosen Theorie gekoppelter Wellen. Zunächst musste jedoch die Eignung dieses Programmes für elektrodynamische Rechnungen im Röntgenenergiebereich überprüft werden. Dazu wurde die Software für die Berechnung von Beugungseffizienzen von geneigten und ungeneigten Zonenplattenstrukturen im Wellenlängenbereich von 0.05 – 10 nm für geeignete Zonenmaterialien optimiert und CWT-Vergleichsrechnungen basierend auf dem Programm *TGWIL* durchgeführt. Nach der erfolgreichen Anpassung des Programmes für Effizienzberechnungen im Röntgenenergiebereich wurde zusätzlich ein Algorithmus implementiert, der gezielte Abweichungen von den optimalen Strukturparametern bei der Berechnung der Beugungseffizienz von Multi-Lagen-Zonenplatten berücksichtigt und somit die Untersuchung der Einflüsse von Prozessierungsfehlern bei der Zonenplattenherstellung erlaubt.

Die Rechnungen werden für periodische Gitterstrukturen, welche zwischen zwei homogenen, linear isotropen, unendlichen Halbräumen liegen [32] durchgeführt. Die Strukturen werden mit Hilfe eines graphischen Editors erzeugt und die Material- und Beleuchtungsparameter vorgegeben. Zusätzlich muss eine endliche Anzahl der zu betrachtenden Fourierkomponenten des Gitters festgelegt werden. Anschließend wird die Gitterstruktur in eine Vielzahl von dünnen Schichten zerlegt. Dabei werden die einzelnen Schichten in rechteckige Bereiche mit konstanten Dielektrizitätskonstanten geteilt. Dies ermöglicht die Berechnung der Beugungseffizienzen der transmittierten und reflektierten Beugungsordnungen eines quasi-unendlich ausgedehnten, periodischen Mediums. Dies erlaubte erstmalig ausführliche Untersuchungen des Beugungswirkungsgrades von Zonenplattenoptiken für den weichen und harten Röntgenbereich mittels der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen. In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse der durchgeführten RCWT-Rechnungen dargestellt.



## 4.2 Volumenbeugungseffekte in Zonenplatten

Nach der geometrisch-optischen Theorie dünner Gitter ist die Beugungseffizienz einer Zonenplatte nur von dem Zonenmaterial, der Zonenhöhe, dem Strich-Lücke-Verhältnis und der verwendeten Beugungsordnung abhängig (siehe Abschnitt 2.4.1). Bei konstan-

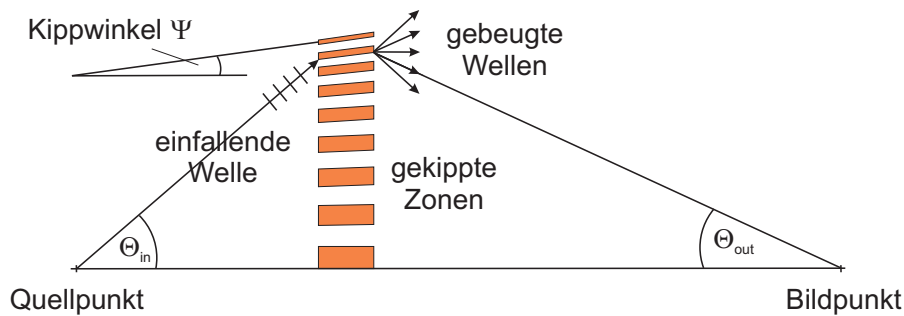


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung zur optischen Achse geneigter Zonenplattenstrukturen. Die Bragg-Bedingung ist erfüllt, wenn der Neigungswinkel  $\Psi = \Psi_{\text{Bragg}} = (\Theta_{\text{in}} - \Theta_{\text{out}})/2$  beträgt.

ter Zonenhöhe steigt jedoch das Aspektverhältnis der beugenden Strukturen bei abnehmender äußerer Zonenbreite. Für Photonenenergien im weichen Röntgenbereich und Aspektverhältnissen größer als 10 : 1 zeigen elektrodynamische Rechnungen, dass die Theorie dünner Gitter ihre Gültigkeit verliert. Volumenbeugungseffekte innerhalb der beugenden Zonenstrukturen führen dazu, dass die Beugungseffizienz nicht länger proportional zu  $1/m^2$  skaliert. Werden die Zonenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen zusätzlich in Richtung der optischen Achse geneigt, so dass die lokale Bragg-Bedingung  $\Theta_{\text{in}} - \Psi = \Theta_{\text{out}} + \Psi$  erfüllt wird (siehe Abbildung 4.3), zeigen RCWT-Rechnungen einen signifikanten Anstieg der Beugungseffizienzen in hohen Beugungsordnungen. Abbildung 4.4 zeigt die Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung einer 200 nm hohen Nickelzonenplatte in Abhängigkeit von der äußeren Zonenbreite. Die Berechnungen wurden für eine Wellenlänge von 2.4 nm und ein Strich-Lücke-Verhältnis von 50% durchgeführt. Dargestellt sind die Effizienzen für geneigte und gerade Zonenstrukturen berechnet nach der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen und zum Vergleich der geometrisch-optische Effizienzwert nach der Theorie dünner Gitter. Aus der geometrisch-optischen Theorie ergibt sich für die gewählten Zonenplattenparameter eine konstante Effizienz von 22%. Die RCWT-Rechnungen zeigen, dass der Beugungswirkungsgrad erster Ordnung für gerade Nickelzonen mit einer Höhe von 200 nm ab einer Zonenbreite von 20 nm signifikant abnimmt. Im Gegensatz dazu erhöht sich die maximale Beugungseffizienz für geneigte Zonenstrukturen auf 28% für Zonenbreiten zwischen 6 – 12 nm.

In Abbildung 4.5 sind RCWT-Ergebnisse der Beugungseffizienz dritter Beugungsordnung von Nickelzonen mit 500 nm Höhe in Abhängigkeit von der effektiven Zo-

nenbreite dargestellt. Die effektive Zonenbreite beschreibt den vergleichbaren  $dr_n$  einer Zonenplatte bei Abbildung in der ersten Beugungsordnung und ergibt sich somit aus  $dr_{n,eff} = \Lambda/2m$ , wobei  $\Lambda$  die Gitterperiode und  $m$  die gewählte Beugungsordnung sind. Auch diese Berechnungen wurden für eine Wellenlänge von 2.4 nm und ein Strich-Lücke-Verhältnis von 50% durchgeführt. Für gerade Zonen nähern sich die durch RCWT berechneten Effizienzen ab einer effektiven Zonenbreite von 13 nm an den geometrisch-optischen Wert von 0.7% an und fallen ab 8 nm effektiver Zonenbreite auf nahezu 0% ab. Durch Einhalten der Bragg-Bedingung wird hingegen die Beugungseffizienz in der dritten Beugungsordnung stark erhöht. Die maximal erreichbare Effizienz für 500 nm hohe Nickelzonen liegt bei 17% für eine effektive Zonenbreite von 9 nm und somit einer Gitterperiode von 54 nm.

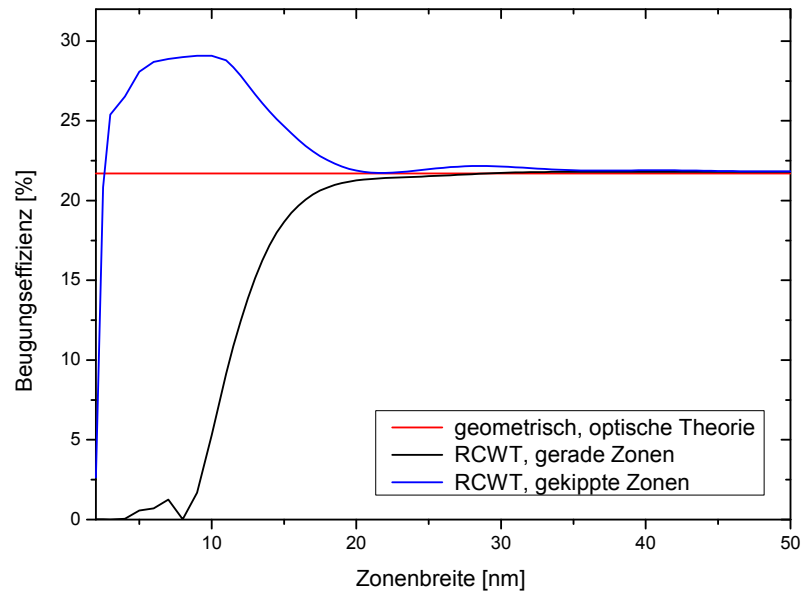


Abbildung 4.4: Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung in Abhängigkeit von der äußeren Zonenbreite für geneigte und gerade Zonenplattenstrukturen aus Nickel berechnet mit RCWT bei  $\lambda = 2.4\text{nm}$ . Zusätzlich ist die konstante Beugungseffizienz nach der Theorie dünner Gitter dargestellt.

Ein weiterer Faktor, der die Beugungseffizienz stark beeinflusst, ist das Strich-Lücke-Verhältnis der absorbierenden Zonenstrukturen zu den dazwischen liegenden durchlässigen Bereichen. In Abbildung 4.6 (a) und (b) sind die Beugungseffizienzen erster und dritter Ordnung von geneigten Nickelzonen in Abhängigkeit von der Zonenhöhe für Strich-Lücke-Verhältnisse von 50%, 30% und 25% dargestellt. Die Periode der Zonenstruktur ist jeweils 100 nm und die Wellenlänge beträgt 2.4 nm. Es wird ersichtlich, dass im Gegensatz zur Vorhersage der klassischen Theorie dünner Gitter kein einfacher

## 4.2 Volumenbeugungseffekte in Zonenplatten

Zusammenhang zwischen dem Strich-Lücke- bzw. Strich-Periode-Verhältnis und der in eine Ordnung gebeugten Intensität besteht. Die Beugungseffizienz hängt zusätzlich

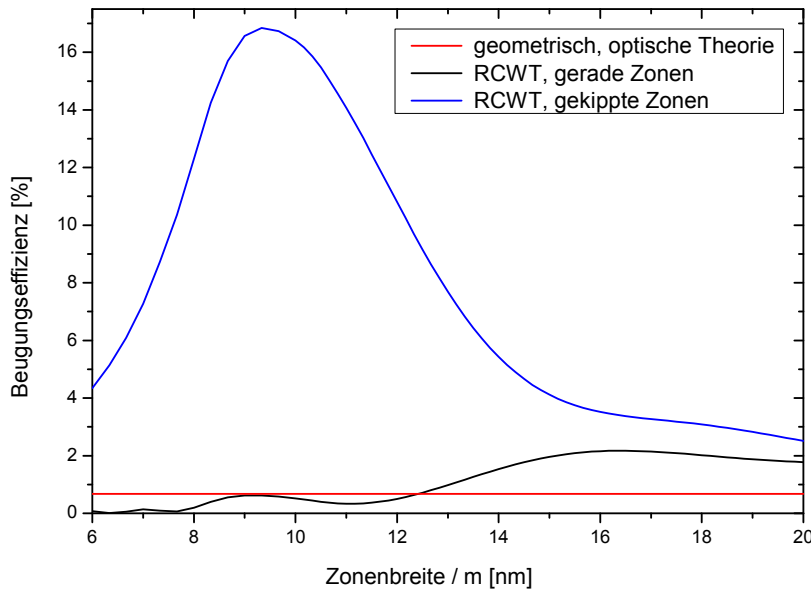


Abbildung 4.5: Beugungseffizienz der dritten Beugungsordnung bei  $\lambda = 2.4\text{ nm}$  in Abhängigkeit von der effektiven Zonenbreite für geneigte und gerade Nickelzonen und die konstante Beugungseffizienz nach der Theorie dünner Gitter.

von der Periode und der Höhe der beugenden Zonenstrukturen ab. Mit abnehmendem Strich-Lücke-Verhältnis nimmt die maximal erreichbare Beugungseffizienz zu. Im Vergleich zu einem Strich-Lücke-Verhältnis von 50% wird die maximale Effizienz in den gezeigten Fällen bei einem Verhältnis von 25% verdoppelt. Die dafür notwendige Zonenhöhe steigt jedoch ebenso mit fallendem Strich-Lücke-Verhältnis an. Die benötigten Strukturhöhen für die maximalen Beugungseffizienzen bei einem Verhältnis von 25% und einer Periode von 100 nm betragen 2400 nm in der ersten und 1900 nm in der dritten Beugungsordnung. Man erkennt, daß Beugungseffizienzen von  $\eta_m \geq 30\%$  sowohl in erster als auch in dritter Ordnung erst ab hohen Aspektverhältnissen von mindestens 40:1 realisiert werden können. Dennoch gibt es Bereiche, in denen durch Anpassen des Strich-Lücke-Verhältnisses bei vorgegebener Zonenhöhe eine Steigerung der erreichbaren Beugungseffizienz erzielt werden kann. Aufgrund einer erhöhten mechanischen Stabilität bei der Prozessierung durch die verbreiterten Lücken zwischen den einzelnen Zonen ermöglicht die Verringerung des Strich-Lücke-Verhältnisses zusätzlich Zonenplattenstrukturen mit gesteigerten Zonenhöhen herzustellen. Die numerische Apertur und somit das Auflösungsvermögen der Optik bleibt dabei gleich gegenüber einer Zonenplatte mit gleicher Periode und einem Strich-Lücke-Verhältnis von 50%.

## 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

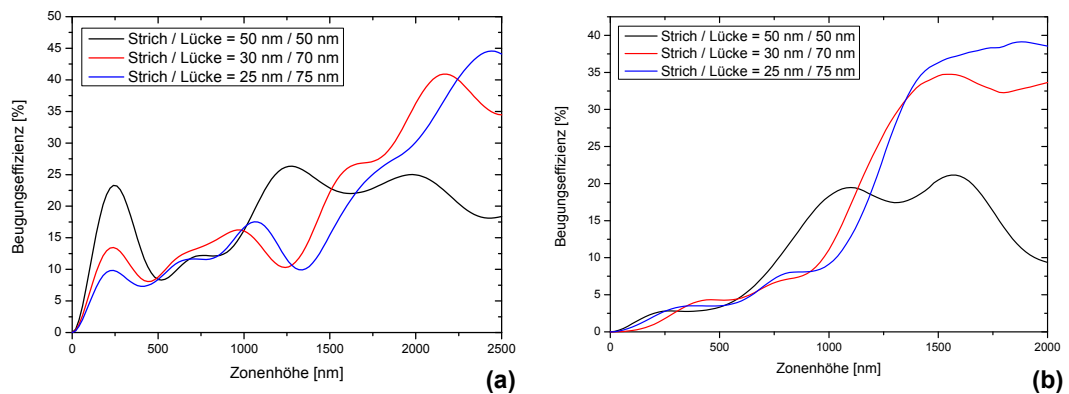


Abbildung 4.6: Nach RCWT berechnete Beugungseffizienzen der (a) ersten und (b) dritten Beugungsordnung für geneigte Nickelstrukturen in Abhängigkeit der Zonenhöhe und des Strich-Lücke-Verhältnisses bei  $\lambda = 2.4\text{ nm}$ . Die maximal erreichbare Beugungseffizienz und das Aspektverhältnis der zugehörigen Zonenplattenstrukturen steigt für abnehmende Strich-Lücke-Verhältnisse.

### 4.3 Einfluß von Herstellungsfehlern auf den Wirkungsgrad in hohen Ordnungen

Die Herstellung von geneigten Zonenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen, wie sie zuvor beschrieben wurden (siehe Abschnitt 4.2), ist technologisch sehr schwierig. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Erweiterung des in Abschnitt 5.1 beschriebenen, konventionellen Tri-Level-Prozesses zum Einsatz gebracht [90, 109]. Dabei wird der ideale Neigungswinkel der Zonen durch übereinandergelagerte, Zonenstrukturen mit abnehmenden Zonenradien angenähert (vergl. Abbildung 2.9, Kapitel 2). Dieser sog. Stack-Prozeß erfordert mehrere neue Teilprozesse. Unter anderem zählen dazu ein Planarisierungsschritt und ein Overlay-Elektronenstrahlolithographieprozeß, bei dem die einzelnen Zonenplattenschichten mit hoher Genauigkeit zueinander ausgerichtet werden. Auf die prozess-technischen Anforderungen bei der Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten mit diesem Verfahren wird in Kapitel 5 eingegangen.

Generell sind drei einflussreiche Fehler zu nennen, die bei der Prozessierung von geneigten Zonenplattenstrukturen auftreten können:

- **Abweichungen bei der Zonenpositionierung (Overlay-Fehler):**

Die Position der einzelnen Zonenplattenschichten wird bei der Elektronenstrahlolithographie mittels geeigneter Marken an die sich jeweils darunter befindliche, bereits prozessierte Zonenplattenschicht angepasst. Ungenauigkeiten in dieser Kalibrierungsroutine führen zu einem Versatz der Schichten untereinander und somit zu Abweichungen des optimalen Neigungswinkels der Zonenstrukturen.

### 4.3 Einfluß von Herstellungsfehlern auf den Wirkungsgrad in hohen Ordnungen

- **Abweichungen in den Einzel-Schichthöhen:**

Die Höhe der als Galvanoform verwendeten Polymerschichten hängt von der Drehzahl beim Aufschleudern des Polymers und dem anschließendem Härungsprozeß ab. Dabei können Variationen in der Schichtdicke auftreten. Zusätzlich wird beim Planarisieren der einzelnen Zonenplattenschichten ein geringer Teil der Galvanoform abgetragen. Daher können die Einzel-Schichthöhen und daraus resultierend auch die Gesamthöhe der geneigten Zonen vom Idealwert abweichen.

- **Abweichungen im Strich-Lücke-Verhältnis:**

Das Strich-Lücke-Verhältnis ist hauptsächlich von der aufgetragenen Dosis während der Elektronenstrahlolithographie und der anschließenden Entwicklungszeit des verwendeten Resists im Entwicklermedium abhängig. Dies kann eine Verringerung oder Verbreiterung der belichteten Strukturen und als Konsequenz Abweichungen im finalen Strich-Lücke-Verhältnis zur Folge haben.

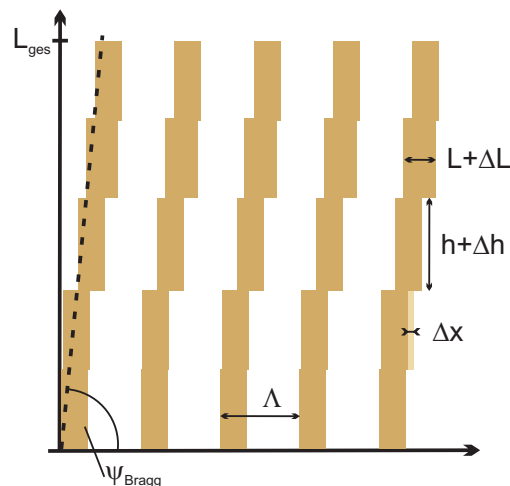


Abbildung 4.7: Um den Winkel  $\psi_{\text{Bragg}}$  geneigte Multi-Lagen-Zonenplattenstrukturen bestehend aus fünf Zonenplattenschichten mit der lokalen Zonenperiode  $\Lambda$ . Eingezeichnet sind die bei der Prozessierung auftretenden Abweichungen der Zonenpositionierung ( $\Delta x$ ), der Einzel-Schichthöhe ( $\Delta h$ ) und des Strich-Lücke-Verhältnisses ( $\Delta L$ ).

Abbildung 4.7 zeigt vereinfacht den Einfluß auf die Geometrie der Zonenstrukturen der beschriebenen Abweichungen bei der Herstellung von geneigten Multi-Lagen-Zonenplatten. Der Effekt dieser drei Prozessierungsfehler auf die Beugungseffizienz von Multi-Lagen-Zonenplatten mit geneigten Zonen wird im Folgendem untersucht

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

und in seinen Auswirkungen verglichen werden. Dazu wurden die Effizienzen drei verschiedener Zonenstrukturen unter Einfluß der Abweichungen mittels RCWT berechnet. Die Vorgaben für die Beispielrechnungen wurden so gewählt, daß für realisierbare Herstellungsparameter (minimale Zonenbreite 20 nm, maximale Einzel-Schichtdicke 180 nm) die Beugungseffizienz und das Auflösungsvermögen in der dritten und fünften Beugungsordnung maximiert werden. Für einen Vergleich der Auswirkungen in fünfter und dritter Ordnung wurde zusätzlich eine Zonenplattenstruktur mit entsprechender, maximaler Effizienz und gleichem Auflösungsvermögen in der dritten Beugungsordnung bei geringerer Zonenhöhe und -breite untersucht (Zonenplattenparameter ZP-T3-40). Um die minimal notwendige Anzahl der Einzel-Zonenplatten für

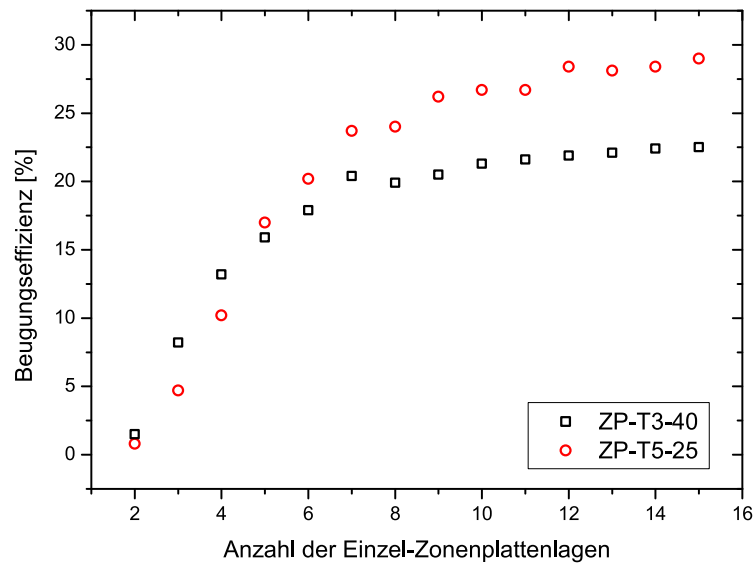


Abbildung 4.8: RCWT-Ergebnisse der Beugungseffizienzen dritter (ZP-T3-40, schwarz) und fünfter (ZP-T5-25, rot) Ordnung in Abhängigkeit von der Anzahl der Einzel-Zonenplattenlagen. Um eine ausreichende Anpassung des Neigungswinkels zu erzielen und einen signifikanten Effizienzverlust zu vermeiden müssen die Multi-Lagen-Zonenplatten aus mindestens fünf Einzel-Lagen aufgebaut sein.

eine hinreichend exakte Approximierung des Neigungswinkels zu ermitteln, wurde der Beugungswirkungsgrad für Multi-Lagen-Zonenplatten mit den Parametern ZP-T3-40 und ZP-T5-25 (siehe Tab. 4.1) in dritter und fünfter Beugungsordnung in Abhängigkeit von der Zahl der verwendeten Zonenplattenschicht berechnet (siehe Abbildung 4.8). Die Rechnungen zeigen, daß die Anzahl der einzelnen Zonenplattenschichten  $\geq 5$  sein muss, um eine ausreichend genaue Annäherung des Neigungswinkels zu erreichen und einen signifikanten Effizienzverlust zu verhindern. Daher sind alle im Fol-

### 4.3 Einfluß von Herstellungsfehlern auf den Wirkungsgrad in hohen Ordnungen

gendem betrachteten Multi-Lagen-Zonenplatten mit geneigten Zonenstrukturen aus fünf Einzel-Zonenplattenlagen aufgebaut. Die ausgewählten Zonenplatten- und Beleuchtungsparameter für die RCWT-Rechnungen sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

	ZP-T3-36	ZP-T5-25	ZP-T3-40
Beugungsordnung	3.	5.	3.
Wellenlänge $\lambda$	2.4 nm		
Periode $\Lambda$	68 nm	84 nm	50 nm
Strich-Lücke-Verhältnis	36%	25%	40%
effektiver $dr_n$	11 nm	8 nm	
Bragg-Winkel $\Psi$	3.02°	4.06°	4.09°
Anzahl Nickelzonenlagen	5		
Einzel-Schichthöhe	180 nm		120 nm
theoretische Beugungseffizienz	28.6%	17.0%	15.9%

Tabelle 4.1: Ausgewählte Zonenplatten- und Beleuchtungsparameter für RCWT-Rechnungen zur Untersuchung des Einflusses von Herstellungsfehlern bei der Prozessierung von Multi-Lagen-Zonenplatten auf die Beugungseffizienz.

Zunächst wurden die einzelnen Abweichungen von der idealen Zonenstruktur der Multi-Lagen-Zonenplatten zufallsgeneriert in die Rechnungen eingefügt. Für eine ausreichend gute Statistik wurden je 5000 Einzelrechnungen für jeden normalverteilten Prozessierungsfehler innerhalb einer vorgegebenen Standardabweichung  $\sigma$  durchgeführt. Die dadurch entstandenen Verteilungen von Effizienzwerten für die jeweiligen Herstellungsfehler wurden mit Gauss-Funktionen angepasst, um die zugehörigen Mittelwerte und Standardabweichungen der berechneten Beugungseffizienzen zu ermitteln.

#### 4.3.1 Einfluß von Abweichungen bei der Zonenpositionierung

In den ersten theoretischen Untersuchungen wurde die Auswirkung von Positionierungsungenauigkeiten der einzelnen Zonenplattenschichten untereinander untersucht. Die Abweichung von der optimalen Position der einzelnen Zonen wird durch einen sogenannten Overlay-Fehler bei der Elektronenstrahlolithographie bestimmt. Um den Einfluß dieses Parameters auf die Beugungseffizienzen zu ermitteln, wurden bei den RCWT-Rechnungen Overlay-ungenauigkeiten von  $\sigma = \pm 1, \pm 2, \pm 3, \pm 4$  nm in die Modellstrukturen der einzelnen Zonenplattenlagen eingefügt.

Die Abbildungen 4.9 (a) und (b) zeigen die ermittelten Mittelwerte und Standardabweichungen der statistischen Effizienzverteilungen in dritter und fünfter Beugungsordnung. Die relativen Fehler der aus der Gauss-Anpassung ermittelten Werte liegen im Bereich von 0.5 - 5%. Es wird ersichtlich, daß die RCWT-Ergebnisse einen starken Abfall der mittleren Beugungseffizienz bei zunehmendem Overlay-Fehler zeigen. Sowohl

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

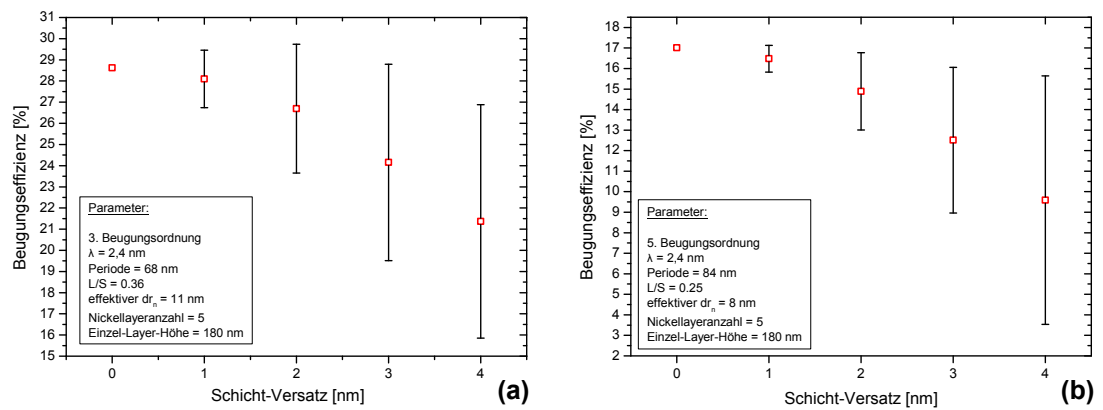


Abbildung 4.9: Aus RCWT-Rechnungen ermittelte statistische Verteilung der Beugungseffizienzen für die Zonenplattenparameter (a) ZP-T3-36 und (b) ZP-T5-25 (siehe Tabelle 4.1) in Abhängigkeit vom Versatz der Zonenplattenschichten. Eingezeichnet sind die Mittelwerte (rot) und Standardabweichungen (Fehlerbalken).

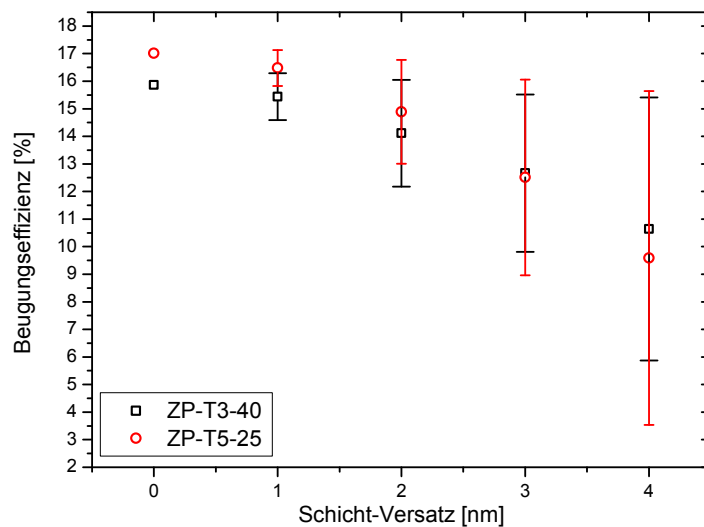


Abbildung 4.10: Vergleich der Beugungseffizienzen dritter (ZP-T3-40, schwarz) und fünfter (ZP-T5-25, rot) Ordnung abhängig vom Overlay-Fehler. Dargestellt sind die Mittelwerte und Standardabweichungen. In der fünften Beugungsordnung ist der Abfall der Effizienz bei zunehmendem Versatz stärker als in der dritten.



### 4.3 Einfluß von Herstellungsfehlern auf den Wirkungsgrad in hohen Ordnungen

in dritter als auch in fünfter Ordnung ist für die hier untersuchten Zonenplattenparameter ein Versatz  $\leq 2$  nm erforderlich, um mindestens 80% der theoretisch maximal möglichen Beugungseffizienz zu erreichen. Bei einer Abweichung von 4 nm sind die Mittelwerte der Effizienzen beider Ordnungen immer noch doppelt so groß wie die vergleichbarer Zonenplatten verwendet in der ersten Beugungsordnung mit geraden Zonen und äußeren Zonenbreiten von 11 bzw. 8 nm. Die zugehörigen Minimalwerte bei  $\sigma = 4$  nm liegen etwa im Bereich der theoretischen Effizienzen solcher Optiken in der ersten Beugungsordnung von 10.9% bei  $dr_n = 11$  nm und 4.6% bei  $dr_n = 8$  nm.

Um herauszufinden, ob es in verschiedenen Beugungsordnungen Unterschiede im Einfluß des Overlay-Fehlers auf die Beugungseffizienz gibt, sind die Ergebnisse für die Parametersätze ZP-T3-40 und ZP-T5-25 (siehe Tabelle 4.1) in Abbildung 4.10 nebeneinander dargestellt. Aus Abbildung 4.10 geht hervor, daß die Beugungseffizienz der fünften Beugungsordnung bei zunehmenden Versatz signifikant stärker abfällt als die Effizienz einer Zonenplatte mit vergleichbaren Parametern in dritter Ordnung. Bei einem Versatz von  $\sigma = 4$  nm liegt die minimale Beugungseffizienz der fünften Ordnung bei 20% des theoretisch maximalen Wertes, wohingegen in der dritten Beugungsordnung noch minimal 38% der Ausgangseffizienz erreicht werden können. Somit sind die Auswirkungen von Positions-Abweichungen auf die erzielbare Beugungseffizienz bei gleichem Auflösungsvermögen der beiden Zonenstrukturen in der dritten Beugungsordnung geringer.

#### 4.3.2 Auswirkungen von Fehlern in der Einzel-Schichthöhe

Als zweiter Faktor wurde die Schichthöhe der einzelnen Zonenplattenschichten einer Multi-Lagen-Zonenplatte betrachtet. Wie bereits erwähnt kann es beim Aufbau des Schichtsystems und durch das Planarisieren der einzelnen Lagen zu Abweichungen von der idealen Strukturhöhe kommen. Um den Effekt dieser Schichthöhen-Fehler auf den erreichbaren Beugungswirkungsgrad zu ermitteln wurden RCWT-Rechnung für Abweichungen  $\sigma = \pm 10, \pm 20, \pm 30, \pm 40, \pm 50$  nm von der Ideallhöhe durchgeführt. Die Mittelwerte und Standardabweichungen der Effizienzverteilungen für Zonenplatten mit den Parametern ZP-T3-36 und ZP-T5-25 (siehe Tabelle 4.1) sind in Abbildung 4.11 (a) und (b) grafisch dargestellt. Im Vergleich zum Versatz der Zonenstrukturen wirkt sich der Einfluss von Ungenauigkeiten in der Zonenhöhe weniger stark auf die maximale Beugungseffizienz aus. In der dritten Beugungsordnung kann bei den gewählten Parametern die Einzel-Schichthöhe um bis zu 40 nm variieren, ohne dass die Effizienz unter 80% des theoretisch erreichbaren Wertes fällt. Im Fall der fünften Ordnung beträgt die Toleranzgrenze immerhin noch  $\pm 30$  nm für die hier untersuchten Zonenstrukturen. Der leichte Anstieg des maximalen Effizienzwertes für Abweichungen  $\leq 20$  nm lässt sich damit begründen, daß die höchstmögliche Beugungseffizienz bei einer ellipsoidalen Form der Zonenplattenstrukturen erzielt wird. Wie bereits zuvor beschrieben ist das Modell der Multi-Lagen-Zonenplatte nur eine Anpassung an den Idealfall und liefert damit nicht die Effizienzwerte der unter idealem Winkel geneigten Zonenstrukturen. Bei einer begrenzten Anzahl von Zonenplattenlagen erlaubt ein Unterschied in den einzelnen Schichthöhen eine deutlich bessere Anpassung der Zonenstruktur an

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

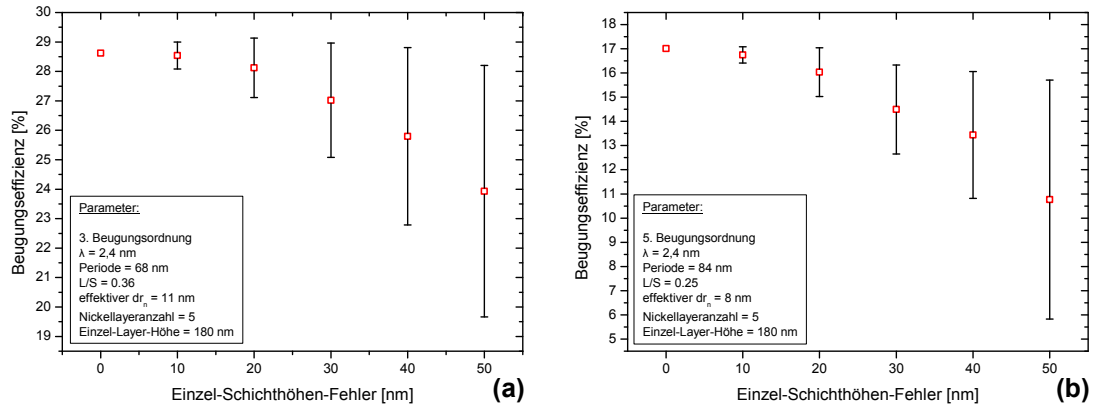


Abbildung 4.11: Mittelwerte (rot) und Standardabweichungen (Fehlerbalken) der statistischen Verteilungen von Beugungseffizienzen berechnet nach RCWT für Zonenplatten mit den Parametern (a) ZP-T3-36 und (b) ZP-T5-25 (siehe Beschriftung oder Tabelle 4.1) abhängig von Fehlern in der Einzel-Schichthöhe.

diese Ellipsoidform und somit eine noch höhere Effizienz im Vergleich zum Anpassungsfall mit gleichen Strukturhöhen der einzelnen Zonenstrukturen.

Auch die Auswirkung des Einzel-Schichthöhen-Fehlers wurde für vergleichbare Zonenplattenparameter, aber verschiedene Beugungsordnungen untersucht (siehe Abbildung 4.12). Der Vergleich in Abbildung 4.12 zeigt, daß die erreichbare Beugungseffizienz der fünften Beugungsordnung im Vergleich zur dritten Ordnung mit zunehmendem Einzel-Schichthöhen-Fehler stärker abfällt. Jedoch tritt der Unterschied im Einfluss der beiden verschiedenen Beugungsordnungen im Vergleich zu einem Versatz zwischen den Zonenlagen weniger ausgeprägt auf. Bei einer Abweichung von  $\sigma = 50 \text{ nm}$  liegt der minimale Effizienzwert in beiden betrachteten Fällen bei ca. 6%.

##### 4.3.3 Effekte durch Ungenauigkeiten im Strich-Lücke-Verhältnis

Wie bereits in Abschnitt 4.2 gezeigt, ist die Beugungseffizienz stark abhängig vom Strich-Lücke-Verhältnis der beugenden Zonenstrukturen. Daher erwartet man bei Abweichungen dieses Verhältnisses vom Idealwert eine signifikante Änderung der erreichbaren Beugungseffizienz. Um diese Annahme zu bestätigen wurden die Verteilungen der Beugungseffizienzen für Strich-Lücke-Fehler von  $\sigma = \pm 1, \pm 2, \pm 3, \pm 4, \pm 5 \text{ nm}$  ermittelt. In Abbildung 4.13 werden die daraus bestimmten Mittelwerte und Standardabweichungen gezeigt. In beiden betrachteten Beugungsordnungen führen zunehmende Abweichungen im Strich-Lücke-Verhältnis wie erwartet zu einem starken Absinken der erzielbaren Effizienzwerte. Um mindestens 80% der maximalen Beugungseffizienz zu erhalten, muss in beiden Fällen der Strich-Lücke-Fehler der untersuchten Zonenplattenstrukturen  $\leq 2 \text{ nm}$  sein. Bei einer Abweichung von  $\sigma = 5 \text{ nm}$  liegt die minimale

### 4.3 Einfluß von Herstellungsfehlern auf den Wirkungsgrad in hohen Ordnungen

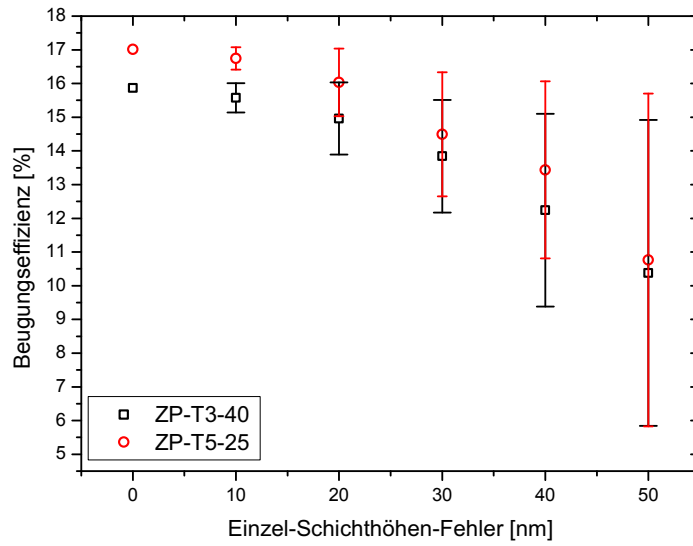


Abbildung 4.12: Mittelwerte und Standardabweichungen der Beugungseffizienzen aus RCWT-Rechnungen für die dritte (ZP-T3-40, schwarz) und fünfte (ZP-T5-25, rot) Beugungsordnung abhängig von Abweichungen in den Einzel-Schichthöhen einer Multi-Lagen-Zonenplatte.

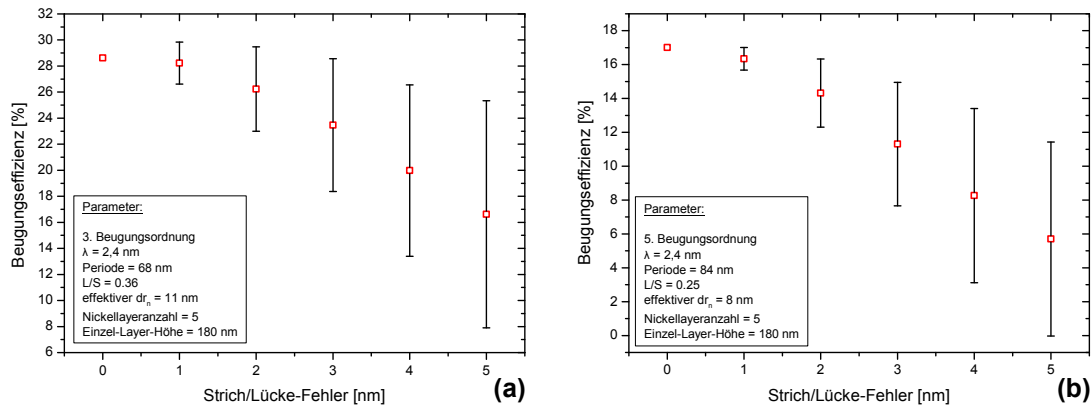


Abbildung 4.13: Nach RCWT berechnete Verteilung der Beugungseffizienzen für die Zonenplattenparameter (a) ZP-T3-36 und (b) ZP-T5-25 (siehe Beschriftung oder Tabelle 4.1) als Funktion der Ungenauigkeit im Strich-Lücke-Verhältnis. Dargestellt sind Mittelwerte (rot) und Standardabweichungen (Fehlerbalken).

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

Effizienz in der fünften Beugungsordnung (Abbildung 4.13(b)) bei nahezu 0%. Im Vergleich bleibt bei diesem Fehler in der dritten Ordnung ein Wirkungsgrad von ca. 8% erhalten.

Für einen besseren Vergleich der Einflüsse in den verschiedenen Beugungsordnungen wurde auch für den Strich-Lücke-Fehler RCWT-Rechnungen für Zonenplatten mit den Parametern ZP-T3-40 und ZP-T5-25 (siehe Tabelle 4.1) durchgeführt. Die statistischen Ergebnisse dieser Rechnungen sind in Abbildung 4.14 grafisch dargestellt. Abbildung 4.14 zeigt, daß der Einfluss der Ungenauigkeiten im Strich-Lücke-Verhältnis bei vergleichbaren Zonenstruktur- und Beleuchtungsparametern in der fünften Beugungsordnung zu einem deutlich stärkeren Abfall des Beugungswirkungsgrades verglichen mit den Effizienzwerten der dritten Ordnung führt. Im Vergleich zur fünften Ordnung, in welcher ein Fehler von 5 nm die minimale Effizienz gegen Null gehen lässt, bleibt in der dritten Ordnung etwa ein Viertel der maximalen Intensität dieser Zonenstrukturen erhalten.

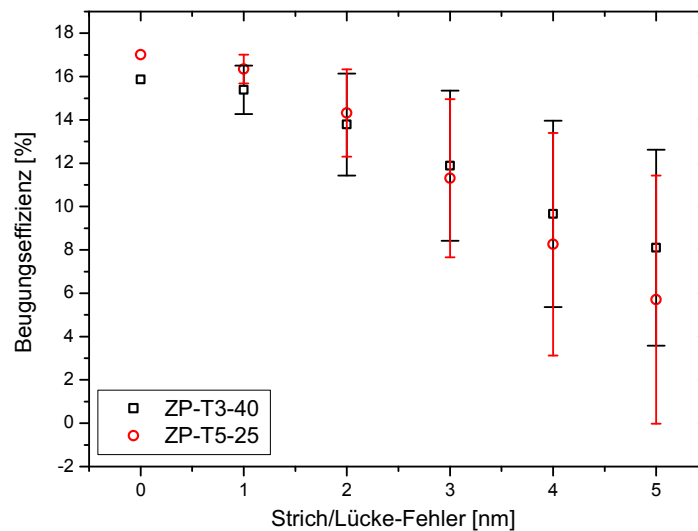


Abbildung 4.14: Aus RCWT-Rechnungen ermittelte Mittelwerte und Standardabweichungen für Beugungseffizienzen dritter (ZP-T3-40, schwarz) Beugungsordnung verglichen mit Ergebnissen in fünfter (ZP-T5-25, rot) Ordnung in Abhängigkeit von Fehlern im Strich-Lücke-Verhältnis.

Aus den Ergebnissen der durchgeführten elektrodynamischen Rechnungen geht hervor, daß zunehmende Abweichungen der Zonenplattenparameter von den Idealwerten in allen Fällen eine Abnahme der mittleren, erzielbaren Beugungseffizienz zur Folge haben. Für die beschriebenen Prozessierungsfehler ergeben sich Toleranzbereiche,

#### 4.4 Hocheffiziente Zonenplatten für den multi-keV-Röntgenbereich

in denen die Volumeneffekte, welche durch die Neigung der Zonenstrukturen erzielt werden und zu einer Erhöhung der Beugungseffizienzen in hohen Beugungsordnungen führen, nur in geringem Maße beeinflusst werden. Um ausreichend hohe Effizienzwerte zu erzielen, müssen der Overlay-Fehler und die Abweichungen im Strich-Lücke-Verhältnis für die in dieser Arbeit untersuchten Zonenplattenparameter  $\leq 2$  nm sein. Dies entspricht in beiden Fällen ca. 6% der äußeren Strukturbreite. Zusätzlich sollten die Ungenauigkeiten in den Einzel-Schichthöhen Werte von 30 – 40 nm nicht überschreiten. Diese Fehlerbereiche setzen sehr hohe prozess-technischen Anforderungen an die verwendeten Nanofabrikationsprozesse. Kapitel 5 beschreibt ausführlich wie die erforderlichen Genauigkeiten bei der Herstellung von hocheffizienten Multi-Lagen-Zonenplatten für Abbildungen in hohen Beugungsordnungen realisiert werden können.

Das Übereinanderlagern von Zonenplattenlagen bietet einen weiteren Vorteil, der hier bisher nicht theoretisch untersucht wurde. Verzichtet man bei der Prozessierung von Multi-Lagen-Zonenplatten auf eine Anpassung des Neigungswinkels, können Zonenstrukturen mit beliebig hohem Aspekt-Verhältnis hergestellt werden. Die Gesamtzonenhöhe ist dann nur durch die Anzahl der einzelnen Zonenplattenlagen begrenzt. Da die Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung mit zunehmender Photonenenergie stark absinkt, jedoch proportional zur Strukturhöhe der beugenden Strukturen skaliert, ermöglicht dies die Herstellung von hoch effizienten Zonenplatten mit sehr hohen Aspektverhältnissen der zur optischen Achse parallelen Zonen für die Anwendung als multi-keV-Röntgenoptiken zur röntgenmikroskopischen Abbildung in erster Beugungsordnung [88]. Im folgendem Abschnitt wird dieser Effekt mittels RCWT-Messungen untersucht und erneut der Einfluß von Fabrikationsfehlern ermittelt.

#### 4.4 Hocheffiziente Zonenplatten für den multi-keV-Röntgenbereich

Wie bereits im Abschnitt 4.2 beschrieben ist die Beugungseffizienz hochauflösender Röntgenoptiken eine Funktion der Höhe, der Periode und des Strich-Lücke-Verhältnisses der beugenden Zonenstrukturen, sowie der für die Abbildung verwendeten Beugungsordnung. Zusätzlich hängt die in eine Ordnung gebeugte Intensität von der Energie der Röntgenphotonen und dem Zonenmaterial ab. Die Abbildungen 4.15 (a) und (b) zeigen Ergebnisse rigoroser Rechnungen für die Beugungseffizienz erster Ordnung von Nickel- und Gold-Zonenplatten in Abhängigkeit von der Photonenenergie und der Zonenhöhe. Für die Berechnungen wurde eine Zonenperiode von 50 nm und ein Strich-Lücke-Verhältnis von 50% gewählt. Die Ergebnisse zeigen, dass der maximale Beugungswirkungsgrad für Nickelstrukturen bei einem Aspekt-Verhältnis von 8:1, 15:1, 35:1 und 60:1 für Photonenenergien von 0.5; 1.5; 3 und 5 keV erreicht wird [130]. Im Vergleich dazu erzielen Goldstrukturen die maximale Effizienz bei Aspektverhältnissen von 7:1, 12:1, 20:1 und 30:1 für 0.5; 1.5; 3 und 5 keV Photonenenergie. Für weiche Röntgenstrahlung ist die maximal erreichbare Beugungseffizienz von Nickelzonen bei annähernd gleichen Zonenhöhen circa doppelt so groß im Vergleich zu Goldzo-

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

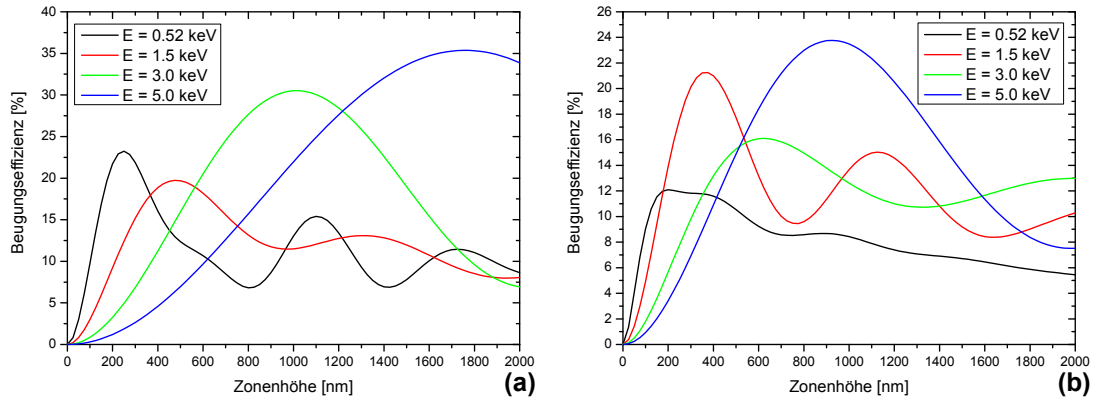


Abbildung 4.15: Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung berechnet mit RCWT für Zonenplatten mit 25 nm breiten (a) Nickel- und (b) Goldzonen als Funktion der Zonenhöhe für ausgewählte Photonenenergien.

nen. Bei höheren Photonenenergien gleichen sich die erzielbaren Effizienzwerte bei unterschiedlichen Strukturhöhen an. Bei 3 und 5 keV benötigen Nickelzonen signifikant höhere Aspektverhältnisse als Goldstrukturen, um die maximale Effizienz zu erzielen. Somit ist Gold bisher das bevorzugte Zonenmaterial für konventionelle Einzel-Lagen-Zonenplatten im multi-keV- und harten Röntgenbereich.

Die Abbildungen 4.16 und 4.17 zeigen zusätzlich die Beugungseffizienzen erster Beugungsordnung in Abhängigkeit von der Zonenstrukturhöhe im Photonenenergiebereich von 0.5 bis 5 keV für Nickel- und Goldzonen mit einer Periode von 50 nm. Für beide Zonenmaterialien zeigt sich, dass bei Photonenenergien unterhalb 1 keV das Maximum der Beugungseffizienz bereits bei Strukturhöhen von ca. 200 nm erreicht wird. Dies entspricht einem Aspektverhältnis der Zonenstrukturen von ca. 8:1 und ist im Rahmen der Herstellung von Einzel-Lagen-Zonenplatten mittels des konventionellen Tri-Level-Prozesses (siehe Abschnitt 5.1) realisierbar. Für höhere Photonenenergien sinken die Beugungseffizienzen beider Zonenmaterialien bei diesem Aspektverhältnis auf unter 5% ab.

Für Nickelzonen steigen oberhalb einer Röntgenenergie von 1 keV die erreichbaren, maximalen Beugungseffizienzen und die dazu benötigten Strukturhöhen kontinuierlich an. Im Gegensatz dazu zeigen Goldzonen ein lokales Maximum von ca. 22% Effizienz bei einer Photonenenergie von 2 keV und einer Goldzonenhöhe von ca. 600 nm. Erst ab 3 keV steigt die Intensitätsausbeute auch für Goldzonenplatten kontinuierlich mit zunehmender Photonenenergie. Dieser Effekt kann auf die M-Absorptionskante von Gold im Energiebereich von 2 keV zurückgeführt werden. Auch aus den Abbildungen 4.16 und 4.17 wird ersichtlich, dass die maximalen Beugungseffizienzen bei höheren Photonenenergien im Falle von Gold als Zonenmaterial sehr viel kleinere Strukturhöhen benötigen. Jedoch sind die absoluten Effizienzwerte für Nickelstrukturen verglichen mit Gold außer im Bereich des zuvor beschriebenen lokalen Maximums um 2 keV

#### 4.4 Hocheffiziente Zonenplatten für den multi-keV-Röntgenbereich

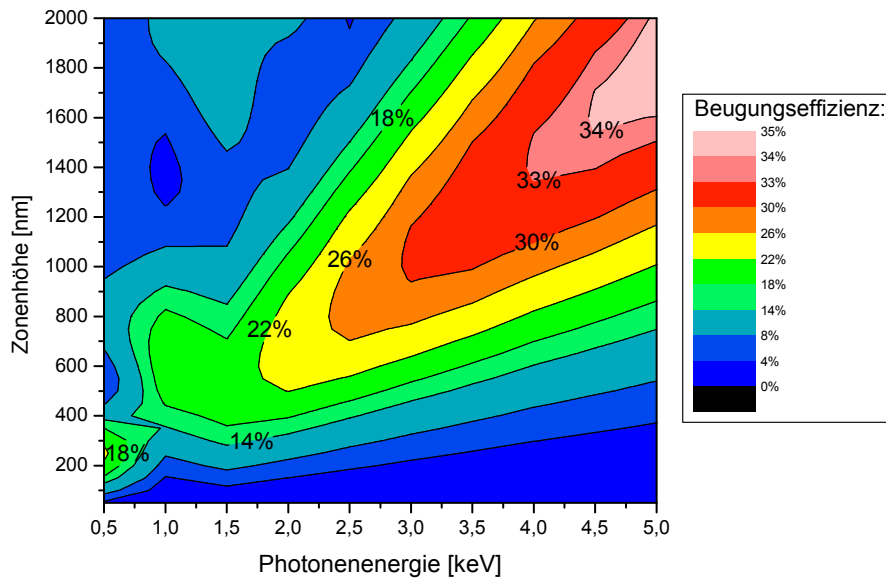


Abbildung 4.16: Beugungseffizienz in erster Beugungsordnung einer Nickelzonenplatte als Funktion der Photonenenergie und der Zonenhöhe. Die Periode der Strukturen beträgt  $\Lambda = 50$  nm.

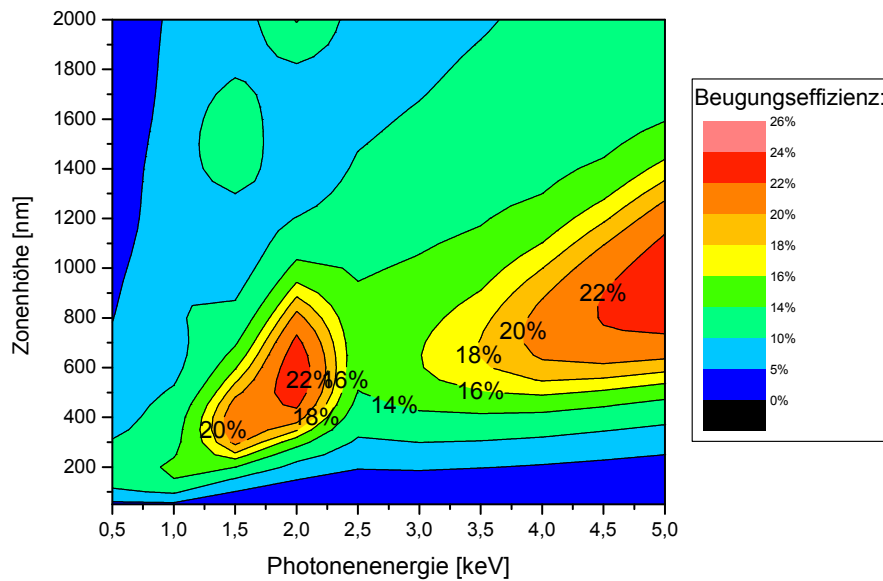


Abbildung 4.17: Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung von 25 nm Goldzonen in Abhängigkeit von der Photonenenergie und der Zonenhöhe.

üben den gesamten Energiebereich stets höher. Bei einer Photonenenergie von 5 keV liefern Nickelzonenplatten mit einer Zonenhöhe von 1800 nm eine theoretische Beugungseffizienz von 35%. Im Vergleich dazu liegt die maximal erzielbare Effizienz für Goldzonen im Bereich von 24% bei 5 keV Röntgenenergie und 800 nm Strukturhöhe. Es zeigt sich, daß durch den Einsatz von Nickelzonenplatten mit sehr hohen Aspektverhältnissen als multi-keV-Optiken die erzielbaren Beugungseffizienzen im Vergleich zu den derzeit verwendeten konventionellen Einzel-Lagen-Goldzonenplatten um einen Faktor 8 gesteigert werden.

Zur Herstellung von Nickelzonenplatten mit den benötigten, sehr hohen Aspektverhältnissen soll der in Abschnitt 5 ausführlich beschriebene Stack-Prozeß für Multi-Lagen-Zonenplatten eingesetzt werden. Verzichtet man dabei auf die Anpassung der Zonenradien der einzelnen Zonenplattenschichten zur Annäherung der einzelnen Zonen an einen Neigungswinkel, so können Zonenstrukturen erzeugt werden, deren Höhe und damit das resultierende Aspektverhältnis nur von der Anzahl der übereinander angeordneten Zonenplatten abhängt. Wie bereits in Abschnitt 4.3 soll der Einfluss von Prozessierungsfehlern auf den erzielbaren Beugungswirkungsgrad von Multi-Lagen-Zonenplatten mit ungeneigten Strukturen bei höheren Röntgenenergien ( $E_{\text{Photon}} \geq 1.5$  keV) untersucht werden. Auf die Betrachtung von Abweichungen in der Einzel-Schichthöhe kann in diesem Fall verzichtet werden, da diese ausschließlich die Gesamthöhe der Zonenstrukturen verändern und der daraus resultierende Effekt direkt aus den vorangegangenen Ergebnissen (Abbildung 4.15 – 4.17) abgelesen werden kann. Um den Einfluss von Abweichungen in der Positionierung der einzelnen Zonenplattenschichten und dem Strich-Lücke-Verhältnis der Zonenstrukturen zu untersuchen, wurden die Beugungseffizienzen der ersten Beugungsordnung mittels RCWT-Rechnungen ermittelt. Zunächst wurden Strukturen bestehend aus zwei übereinander gelagerten Nickel- bzw. Goldzonenplatten betrachtet. Die Gitterperiode wurde mit 50 nm und die Einzel-Schichthöhe mit 180 nm vorgegeben. Goldzonen mit einer resultierenden Gesamthöhe von 360 nm erreichen die maximale Beugungseffizienz bei einer Photonenenergie von ca. 1.5 keV (vergleiche Abbildungen 4.16 und 4.17). Die Abbildungen 4.18 (a) und (b) zeigen die berechneten Effizienzen der ersten Beugungsordnung für Nickel- und Goldzonen als Funktion des Versatzes der zweiten Zonenplattenschicht zu den darunter befindlichen Zonenstrukturen und des Strich-Lücke-Verhältnisses.

Aus Abbildung 4.18 (a) wird ersichtlich, dass die in die erste Ordnung gebeugte Intensität mit steigendem Versatz der zweiten Zonenplattenschicht zu den darunter befindlichen Strukturen abnimmt. Bei den untersuchten Zonenplattenparametern werden mindestens 80% des maximalen Beugungswirkungsgrades bei einem Versatz  $\leq 6$  nm im Fall von Nickelzonen und  $\leq 8$  nm für Gold als Zonenmaterial erreicht. Für eine Positionierungsungenauigkeit halb so groß wie die äußere Zonenbreite der Zonenplattenstrukturen sinken die Effizienzen für beide Zonenmaterialien auf die Hälfte des theoretisch maximalen Wertes ab. Ab einer Abweichung von ca. 20 nm, das entspricht 80% der äußeren Zonenbreite geht der Beugungswirkungsgrad gegen Null. Unter zunehmenden Einfluß eines Strich-Lücke-Fehlers ergibt sich ein vergleichbarer Effizienzverlauf (siehe Abbildung 4.18 (b)). Geringe Abweichungen führen im Fall von Gold als Zonenmaterial sogar zu einer leichten Erhöhung der Beugungseffizienz im



#### 4.4 Hocheffiziente Zonenplatten für den multi-keV-Röntgenbereich

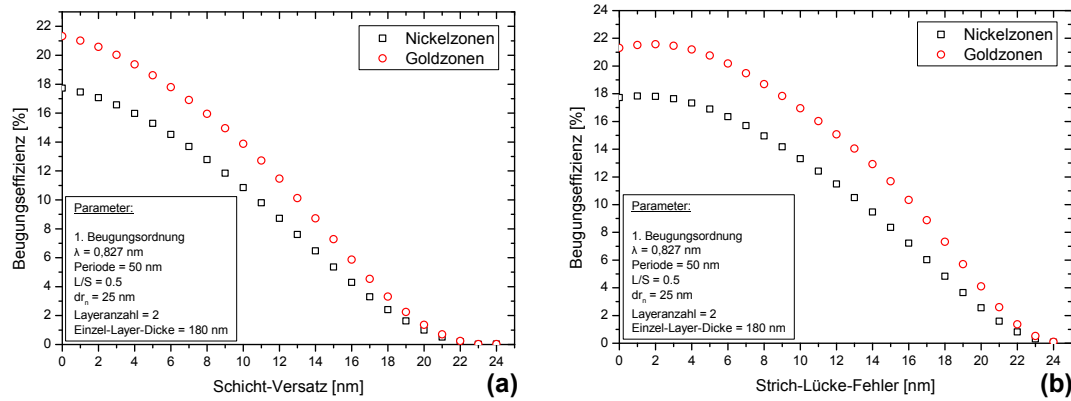


Abbildung 4.18: Beugungseffizienzen der ersten Beugungsordnung von zwei gestackten Nickel- bzw. Goldzonenplatten mit einer Periode von 50 nm in Abhängigkeit von (a) dem Schicht-Versatz der beiden Zonenlagen und (b) dem Strich-Lücke-Verhältnis der Strukturen. Die Photonenenergie beträgt 1.5 keV und die Gesamthöhe der beugenden Strukturen ist 360 nm.

Vergleich zu den Ausgangswerten für ein Verhältnis von 0.5. Dieser Effekt kann auf die in Abschnitt 4.2 beschriebenen Volumeneffekte bei geneigten Zonenplattenstrukturen zurückgeführt werden, da Abweichungen vom vorgegebenen Strich-Lücke-Verhältnis zu einer Annäherung an einen Neigungswinkel führen. Bei beiden Materialien der betrachteten Zonenstrukturen werden mindestens 80% der maximalen Effizienz bei einer Abweichung  $\leq 10$  nm erzielt, was einem Strich-Lücke-Verhältnis von 0.7 entspricht. Somit kann die Breite der äußeren Zonen um bis zu 40% variieren, ohne dass der Beugungswirkungsgrad signifikant abnimmt.

In weiterführenden RCWT-Rechnungen wurden die Auswirkungen von Prozessierungsfehlern auf eine Multi-Lagen-Zonenplatte mit höherer Anzahl der Zonenplattenschichten betrachtet. Dazu wurden die erreichbaren Beugungseffizienzen der ersten Beugungsordnung von Nickelzonenstrukturen für den Röntgenenergiebereich um 5 keV untersucht. Die maximale Effizienz einer solchen Zonenplatte ist bei einer Strukturhöhe von ca. 1800 nm erreicht (vergleiche Abbildung 4.16). Aufgrund einer maximalen Einzel-Schichthöhe von 180 nm besteht die resultierende Optik aus 10 Zonenplattenschichten. Die Ergebnisse der elektrodynamischen Rechnungen sind in den Abbildungen 4.19 (a) und (b) dargestellt. Die Mittelwerte und Standardabweichungen der Beugungseffizienzen unter Einfluss des jeweiligen Fehlers wurden nach dem in Abschnitt 4.3 beschriebenen statistischen Verfahren aus den Verteilungen der Effizienzwerte ermittelt. Mit einem zunehmenden Versatz der einzelnen Zonenplattenschichten nimmt auch in diesem Fall der erreichbare Beugungswirkungsgrad der Multi-Lagen-Zonenplatte signifikant ab. Für eine Effizienz von mindestens 80% des maximalen Wertes ist für die hier untersuchte Zonenplattenstruktur ein Versatz  $\leq 10$  nm

#### 4 Elektrodynamische Berechnungen der Beugungseffizienzen von Zonenplatten

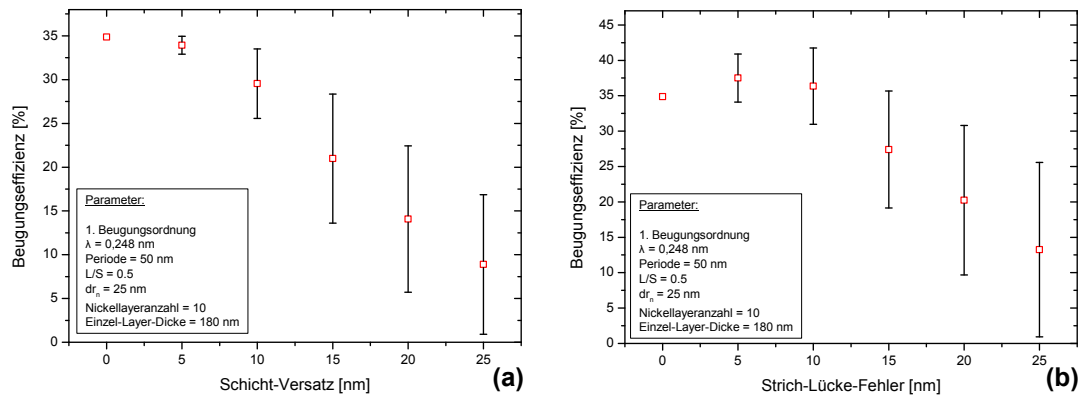


Abbildung 4.19: Beugungseffizienzen der ersten Beugungsordnung einer Multi-Lagen-Zonenplatte bestehend aus 10 Nickelzonenplattenschichten in Abhängigkeit von (a) dem Schicht-Versatz der Zonenlagen und (b) dem Strich-Lücke-Fehler der Strukturen. Die Berechnung wurden für eine Photonenenergie von 5 keV, eine Periode von 50 nm und eine Einzel-Schichthöhe von 180 nm durchgeführt.

erforderlich. Dies entspricht 20% der äußeren Zonenperiode. Die Ergebnisse in Abbildung 4.19 (b) zeigen erneut, dass kleine Abweichungen vom Idealwert des Strich-Lücke-Verhältnisses aufgrund auftretender Volumeneffekte zu einer Erhöhung der in die erste Ordnung gebeugten Intensität führen. Auch für diese Zonenplattenparameter sinkt die Beugungseffizienz ab einem Strich-Lücke-Fehler von ca. 10 nm mit zunehmenden Abweichungen.

Die Untersuchung der Effekte von Prozessierungsfehlern bei der Herstellung von ungeneigten Multi-Lagen-Zonenplatten mit sehr hohen Aspektverhältnissen auf den theoretisch erzielbaren Beugungswirkungsgrad liefern im Vergleich zu geneigten Zonenstrukturen deutlich größere Toleranzbereiche für die betrachteten Herstellungsgenauigkeiten. Um einen signifikanten Effizienzverlust zu vermeiden, darf der Versatz zwischen den einzelnen Zonenlagen nicht mehr als 20% der minimalen Zonenperiode betragen. Zusätzlich sollten Variationen im Strich-Lücke-Verhältnis der beugenden Zonenstrukturen kleiner als 40% der äußeren Zonenbreite  $dr_n$  sein. Volumeneffekte können bei geringen Strich-Lücke-Fehlern zu einer Erhöhung der Beugungseffizienz gegenüber dem Ausgangswert führen.

Die mit Hilfe der elektrodynamischen Rechnungen ermittelten Toleranzbereiche für die verschiedenen Herstellungsfehler müssen bei der Nanofabrikation von Multi-Lagen-Zonenplatten mit geneigten oder ungeneigten Zonen eingehalten werden, um eine Effizienzsteigerung der Röntgenoptiken zu erzielen. Im Anschluß an dieses Kapitel wird ein Verfahren zur Herstellung derartiger Optiken basierend auf einem Tri-Level-Prozeß vorgestellt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die für diesen Stack-Prozeß erforder-

#### *4.4 Hocheffiziente Zonenplatten für den multi-keV-Röntgenbereich*

derlichen Teilprozessschritte entwickelt. Dies ermöglicht zukünftig die Herstellung von hocheffizienten Zonenplattenobjektiven für die multi-keV-Röntgenmikroskopie oder für Abbildungen in hohen Beugungsordnungen im weichen Röntgenenergiebereich.



## 5 Nanostrukturierung von Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie

Die Auflösung und Kontrastübertragung von röntgenmikroskopischen Abbildungen wird im Wesentlichen von der Qualität der verwendeten Röntgenoptiken bestimmt. Die Nanostrukturierung hochauflösender Zonenplatten als Objektive für die Röntgenmikroskopie stellt dabei aufgrund erforderlicher, kleinster Strukturbreiten von 10-30 nm mit möglichst hohen Aspektverhältnissen hohe Ansprüche an die Nanotechnologie. Die ersten für die Röntgenmikroskopie eingesetzten Zonenplattenstrukturen wurden holographisch belichtet [99]. Dieses Verfahren bietet den Vorteil, daß auch großflächige Zonenplatten mit geringem Zeitaufwand hergestellt werden können. Die herstellbaren Strukturbreiten waren dabei aufgrund der verwendeten Wellenlänge auf minimal 54 nm begrenzt [100]. Um die minimal erzielbaren Zonenbreiten weiter zu senken, wurden verschiedene Herstellungsverfahren basierend auf einer elektronenstrahlolithographischen Erzeugung der Zonenplattenmuster entwickelt. In einer Methode wird die auf diese Weise strukturierte Resistschicht direkt als Form für die galvanische Abscheidung des Zonenmaterials verwendet. Dabei wird das erzielbare Aspektverhältnis der Zonenplattenstrukturen durch die Aufweitung des Elektronenstrahls in Folge von Elektronenstreuung im Resistmaterial limitiert. Um diesen Effekt zu minimieren, kann ein Tri-Level-Prozeß angewendet werden, bei dem die Strukturen in einer dünnen Resistschicht erzeugt und anschließend mittels Trockenätzverfahren in eine geeignete Galvanoform übertragen werden. Mit diesem Prozeß können unter Verwendung von konventionellen, nicht quervernetzten Polymeren Zonenplattenstrukturen mit maximalen Aspektverhältnissen von etwa 6 : 1 hergestellt werden. In den folgenden Abschnitten werden die einzelnen Prozessschritte des im Rahmen dieser Arbeit angewendeten Tri-Level-Prozesses erläutert. Anschließend wird ein auf Basis des Tri-Level-Prozesses entwickeltes Herstellungsverfahren für die Prozessierung von Multi-Lagen-Zonenplatten beschrieben.

### 5.1 Tri-Level-Prozeß zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplatten

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Tri-Level-Prozeß bestehend aus Elektronenstrahlolithographie, Trockenätzprozessen und galvanischer Abscheidung zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplattenstrukturen mit äußeren Zonenbreiten bis zu 25 nm angewandt. Abbildung 5.1 zeigt die einzelnen Teilprozessschritte des Tri-Level-Prozesses und die Bestandteile des verwendeten Schichtsystems.

## 5 Nanostrukturierung von Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie

Im ersten Schritt werden die Zonenplattenstrukturen mittels Elektronenstrahlolithographie in eine dünne Resistschicht geschrieben. Nach dem Entwickeln werden die Strukturen durch Trockenätzen in eine Maskenschicht und anschließend in ein als Galvanoform geeignetes Polymer übertragen. Die strukturierte Polymerform wird durch galvanische Abscheidung mit Nickel aufgefüllt. Zuletzt werden die Nickelzonenstrukturen durch erneutes Trockenätzen von der Maskierung und der Polymerform befreit. Die folgenden Abschnitte erläutern die Herstellung und Eigenschaften des eingesetzten Schichtsystems zur Erzeugung von Zonenplatten mit dem Tri-Level-Prozeß näher. Zusätzlich werden die Funktionsweise und die wichtigsten Parameter der einzelnen Teilprozesse beschrieben.

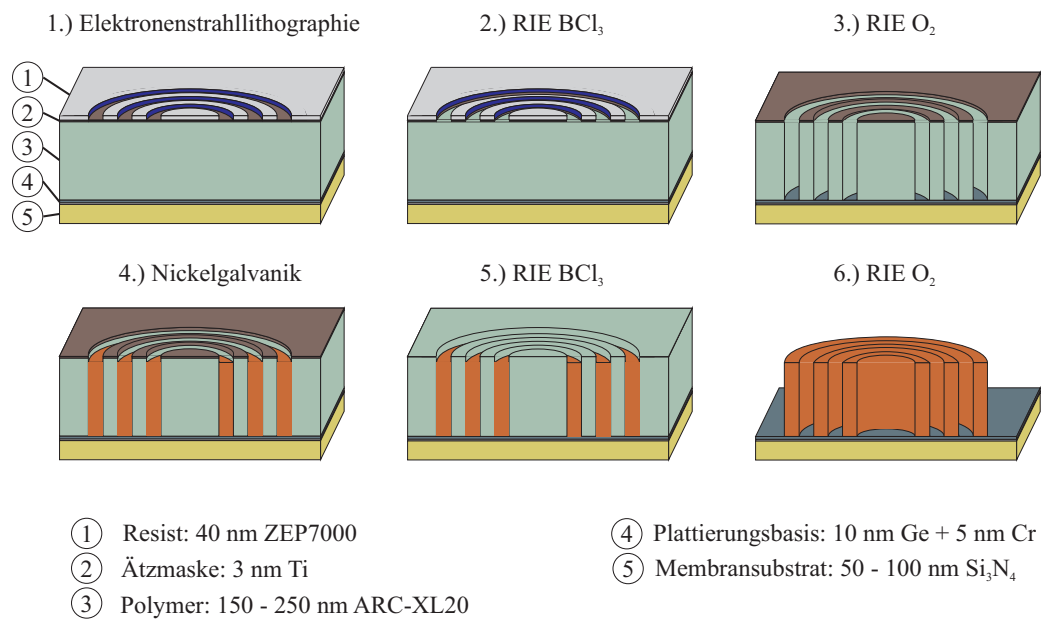


Abbildung 5.1: Teilprozesse des Tri-Level-Prozesses für die Herstellung hochauflösender Zonenplatten. Gekennzeichnet sind zusätzlich die Bestandteile des verwendeten Schichtsystems.

### 5.1.1 Das Schicht-System

Als Schichtsystem für die Herstellung von Zonenplatten mittels des Tri-Level-Prozesses werden Plattierungsbasis, Polymerschicht, Ätzmaske und Elektronenstrahl-Resist auf ein Substrat mit hoher Röntgentransmission aufgebracht. Als Trägermaterialien für die herzustellenden Zonenplatten dienen 100 nm dicke Siliziumnitrid-Membranen ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ), welche sich durch eine ausreichend hohe Transmission im genutzten, weichen Röntgenenergiebereich auszeichnen. Die Röntgenabsorption nimmt dabei für Photonenenergien oberhalb der Stickstoff K-Kante bei ca. 400 eV kontinuierlich ab. Mindestens

### 5.1 Tri-Level-Prozeß zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplatten

90% der eingestrahltten Intensität werden ab einer Photonenenergie von 900 eV für 100 nm dickes  $\text{Si}_3\text{N}_4$  transmittiert. Im Bereich des sog. „Wasserfensters“ bei ca. 500 eV beträgt die Absorption der Substratfolien 35% – 40%. Die Platingbasis für die resultierende Galvanoform besteht aus einer 5 nm dicken haftvermittelnden Chrom- und einer 10 nm dicken Germaniumschicht. Beide Materialien eignen sich durch ihre geringen Absorptionskoeffizienten bei den verwendeten Photonenenergien [96]. Germanium bietet zudem den Vorteil, daß sich dessen Oxide im wässrigen Elektrolyten lösen. Dies ist notwendig, da die Oberfläche der Kontaktierungsschicht beim späteren reaktiven Ionenätzen der Galvanoform mit Sauerstoff oxidiert wird und somit eine isolierende Schicht ausbildet, welche den Galvanisierungsprozeß behindert. Alle Metallschichten des Schicht-Systems werden mittels Elektronenstrahlverdampfen in einer Hochvakuum-Aufdampfanlage A700Q (*Leybold Optics Dresden GmbH*) aufgedampft. Das Verdampfen des jeweiligen Targets erfolgt bei einem Druck von  $2 - 3 \cdot 10^{-6}$  mbar. Die Aufdampftrate beträgt dabei etwa 0.05 bis 0.5 nm/s.

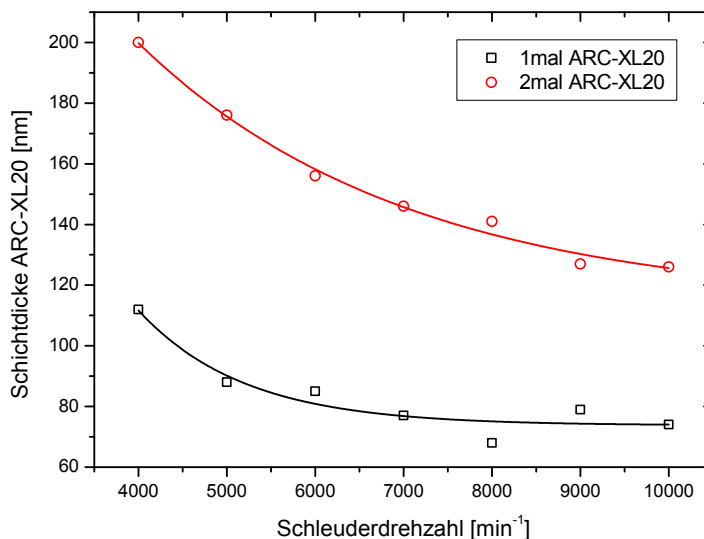


Abbildung 5.2: Resultierende Schichtdicke von ARC-XL20 nach ein- und zweimaligen Aufschleudern in Abhängigkeit von der verwendeten Schleuderdrehzahl. Das Polymer wurde nach jedem Schleudervorgang einstündig in Vakuum bei 170 °C ausgebacken.

Auf die Platingbasis wird das Polymer ARC-XL20 (*Brewer Science Inc.*) als Ausgangsmaterial für die spätere Galvanoform [45] mit einer Lackschleuder vom Typ POLOS der Firma *Semiconductor Production Systems* aufgebracht und anschließend unter Vakuumbedingungen ausgebacken. Die resultierende Schichtdicke hängt dabei von der Drehzahl beim Aufschleudern und den gewählten Parametern beim Ausbacken des

Kunststoffes ab. Um bei den verwendeten Probengrößen (ca.  $0.5 - 1 \text{ cm}^2$ ) eine homogene Polymerschicht zu erzeugen, sollte die Drehzahl nicht unter 4000 U/min liegen. Die optimale Polymerhöhe von 180 – 200 nm für die weiteren Prozessschritte wurde durch zweifaches Aufschleudern erzielt. Dabei wurden die Schichten nach jedem Aufschleudervorgang eine Stunde lang in Vakuum bei 170 °C ausgebacken. Abbildung 5.2 zeigt die Polymerschichtdicke in Abhängigkeit von der verwendeten Drehzahl für ein- und zweimaliges Aufschleudern. Im Anschluß wird als Maskierung für die spätere Strukturierung der Polymerschicht eine 3 nm dicke Titanschicht ebenfalls mittels Elektronenstrahlverdampfen aufgebracht. Titan wird aufgrund der ausgezeichneten Haftung auf den verwendeten Polymerschichten und der hohen Selektivität beim späteren Trockenätzprozeß als Maskenmaterial eingesetzt.

Den Abschluß des Schicht-Systems bildet eine für Elektronen empfindliche Resistschicht. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dazu eine 1:1 Verdünnung des Positiv-Resistes ZEP7000-22 (*ZEON Corporation*) mit Diethylenglycoldimethylether als Lösungsmittel bei einer Drehzahl von  $6000 \text{ min}^{-1}$  aufgeschleudert und anschließend bei 170 °C eine halbe Stunde unter Normaldruck ausgebacken. Mit diesen Parametern ergibt sich eine Resistdicke von 40 – 50 nm. Der ZEP7000-Resist eignet sich aufgrund der hohen Ätzbeständigkeit, einer geringen erforderlichen Elektronendosis und einem hohen Kontrast sehr gut für die Herstellung von Zonenplattenstrukturen [84].

### 5.1.2 Elektronenstrahlithographie

Mit Hilfe der Elektronenstrahlithographie (engl. Electron Beam Lithography - EBL) wird eine vorgegebene Struktur durch einen Elektronenstrahl in einen für Elektronenbestrahlung empfindlichen Resist geschrieben. Anschließend werden die auf diese Weise chemisch veränderten Strukturen in einem geeigneten Entwickler aufgrund der Löslichkeitsunterschiede zwischen belichtetem und unbelichtetem Bereich entfernt [79]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde für die EBL ein konventionelles Rasterelektronenmikroskop (engl. Scanning Electron Microscope - SEM) vom Typ LEO 1560 mit einer Lithographie-Erweiterung bestehend aus einem Elli27 Pattern-Generator (*Interface Company*), einem Beam-Blanker (*Raith GmbH*) und einer Laser-Interferometer-Stage (*TSL Ltd.*) eingesetzt. Die einzelnen Komponenten werden mittels einer geeigneten Lithographie-Software (*Nanomaker*) angesteuert. Abbildung 5.3 zeigt den prinzipiellen Aufbau des verwendeten Elektronenstrahlschreibsystems. Das verwendete SEM verfügt über eine GEMINI-Elektronenstrahlsäule, welche sich durch eine hohe Auflösung und Strahlstabilität auszeichnet [20]. Als Elektronenquelle dient eine Schottky Feldemissions-Kathode. Die Elektronen werden mit einer Extraktionsspannung zwischen 5 und 6 kV aus der Kathode abgesaugt und anschließend über ein Linsensystem auf einen Punkt fokussiert. Eine spezielle Eigenschaft der GEMINI-Säule ist, daß die Extraktionsspannung unabhängig von der Beschleunigungsspannung ist und die Elektronen das Linsensystem stets mit der gleichen Energie durchlaufen. Auf diese Weise werden hohe Emissionsströme und geringe Energieabweichungen, welche typisch für Kalt-Feldemissions-Kathoden sind, mit hoher Stabilität und geringer Störanfälligkeit verbunden [46]. Der Strahlstrom wird mittels einer Sechsllochblende im Strahlengang



### 5.1 Tri-Level-Prozeß zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplatten

begrenzt, wobei das Umschalten zwischen den unbeweglichen AperturbLENden durch eine elektromagnetische Auslenkung des Elektronenstrahls realisiert wird. Die Ablenkung der Elektronen in x- und y-Richtung erfolgt mit Hilfe magnetischer Rasterspulen und wird während der EBL direkt von dem externen Pattern-Generator gesteuert. Die Belichtungen werden im Vektor-Scan-Verfahren durchgeführt. Dies beinhaltet eine Zerlegung der zu belichtenden Strukturen in Polygone, welche dann mit dem fokussierten Elektronenstrahl innerhalb einer vorgegebenen Schrittweite mäanderförmig abgerastert werden [76]. Ein Kondensator dient dabei als so genannter Beam-Blanker und

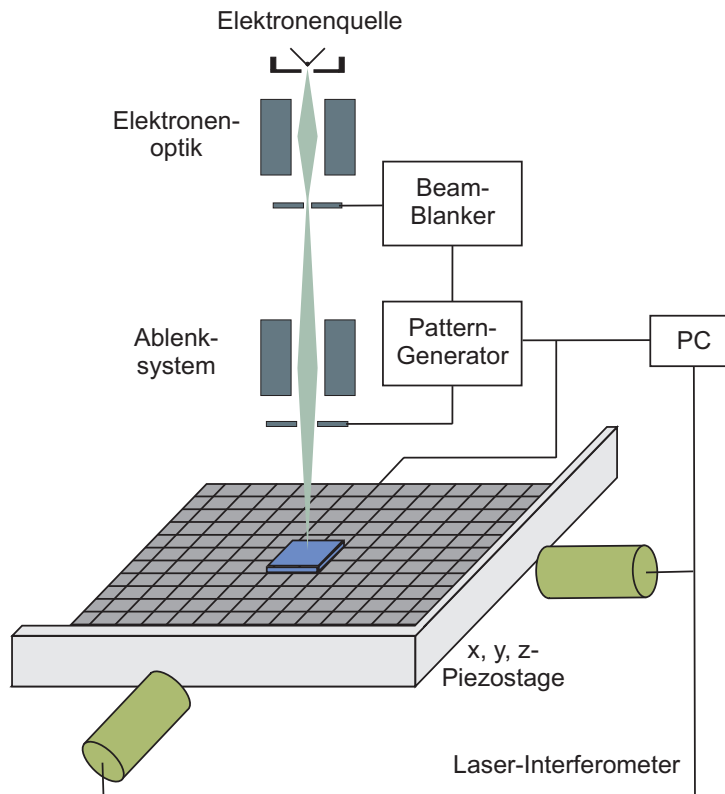


Abbildung 5.3: Prinzipieller Aufbau des verwendeten EBL-Systems bestehend aus Rasterelektronenmikroskop, Pattern-Generator, Beam-Blanker und Laser-Interferometer-Stage.

erlaubt ein schnelles Ein- und Austasten des Elektronenstrahls zwischen den Belichtungsschritten. Das gesamte Schreibfeld wird vom Pattern-Generator in  $65536^2$  einzelne Bildpunkte zerlegt (16-bit Auflösung). Die notwendige Belichtungszeit bzw. Verweilzeit des Elektronenstrahls pro Bildpunkt  $t_V$  ergibt sich aus den gewählten Schrittweiten in x- und y-Richtung  $\Delta x$  und  $\Delta y$ , dem Elektronenstrahlstrom  $I_e$  und der Resistsensiti-

vität  $S$  zu:

$$t_V = \frac{\Delta x \cdot \Delta y}{I_e} \cdot S. \quad (5.1)$$

Der verwendete ZEP7000-Resist zeichnet sich durch eine hohe Sensitivität von ca.  $200 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  bei einer Elektronenstrahlenergie von 30 keV aus. Um eine hohe Auflösung bei der Belichtung zu erreichen, müssen die Schrittweiten möglichst klein sein. Die Geschwindigkeit, mit der sich der Elektronenstrahl über das Pixelraster bewegt, wird durch die Ansteuerungsfrequenz der Rasterpulen von 1 MHz begrenzt. Daraus ergibt sich eine minimale Belichtungsdauer pro Bildpunkt von  $1 \mu\text{s}$ . Aus Gleichung 5.1 folgt, daß der Strahlstrom durch Wahl einer geeigneten Aperturblende begrenzt werden muss, damit diese Verweildauer nicht unterschritten wird. Die Belichtungen im Rahmen dieser Arbeit wurden mit einer Apertur mit einem Durchmesser von  $10 \mu\text{m}$  durchgeführt, wobei Strahlströme zwischen 20 – 30 pA erzielt wurden.

Die maximale Auslenkung des Elektronenstrahls ist begrenzt durch zunehmende Astigmatismusfehler und die Vergrößerung der Strahlfleckgröße am Rand des Schreibfeldes. Aufgrund der begrenzten Bildpunktadressierung durch den Pattern-Generator verringern kleine Schrittweiten die maximale Schreibfeldgröße zusätzlich. Bei großen Schreibfeldern muss daher die Probe unter dem Elektronenstrahl verschoben werden. Dazu ist die Probe auf einem motorisierten Tisch befestigt, welcher mit einem Laser-Interferometer gekoppelt ist, um die Tischposition mit hoher Genauigkeit zu bestimmen. Ein Elektronen-Rückstreu-Detektor ermöglicht die Aufnahme der Probe mittels vom Target zurückgestreuten Elektronen. Auf diese Weise können geeignete Marken zur Kalibrierung des Schreibfeldes und zur Anpassung der Position des Elektronenstrahls und des Tisches detektiert werden. Alle im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten EBL-Belichtungen wurden bei der maximalen Beschleunigungsspannung von 30 kV durchgeführt. Dies verringert eine Verbreiterung der belichteten Strukturen aufgrund von gestreuten Elektronen und minimiert den sog. Proximity-Effekt, welcher Abweichungen der deponierten Elektronendosis durch vom Substrat rückgestreuter Elektronen beschreibt [17, 76].

Im Anschluß an die Belichtung werden die lithographisch-erzeugten Strukturen in einem geeignetem Lösungsmittel entwickelt. Frühere Untersuchungen [80] ergaben, daß die besten Ergebnisse bei der Entwicklung von ZEP7000-Resist mit Hexylacetat als Entwicklermedium erzielt werden. Dazu werden die zu entwickelnden Proben 30 s in Hexylacetat getaucht und anschließend in Isopropanol und Pentan gespült.

### 5.1.3 Strukturübertragung durch reaktives Ionenätzen

Für die Strukturübertragung vom Elektronenstrahlresist in die darunter befindliche Maskierungs- und Polymerschicht wird ein stark anisotropes Ätzverfahren benötigt. Das heißt die Ätzrichtung und -geschwindigkeit sind gerichtet. Dadurch wird ein Materialverlust an den Seitenwänden und somit ein mögliches Unterätzen der Strukturen vermieden und es können Zonenplattenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen (Verhältnis von Strukturhöhe zu -breite) übertragen werden. Zusätzlich muss der Ätzprozeß hoch selektiv sein, so daß die Ätzrate der zu strukturierenden Schicht sehr viel

### 5.1 Tri-Level-Prozeß zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplatten

höher ist als die des Maskenmaterials. Beide Voraussetzungen erfüllt das sog. reaktive Ionenätzen (engl. Reactive Ion Etching - RIE) [62, 76]. Der Ätzprozeß wird dabei in einem Parallel-Platten-Reaktor durchgeführt, wobei das zu ätzende Substrat auf der kleinen Elektrode (Kathode) aufgebracht wird. Abbildung 5.4 zeigt schematisch den Aufbau der benutzten Anlage für die Strukturübertragung durch reaktives Ionenätzen. Durch eine angelegte Hochfrequenzspannung wird im gasförmigen, ätzenden Medium

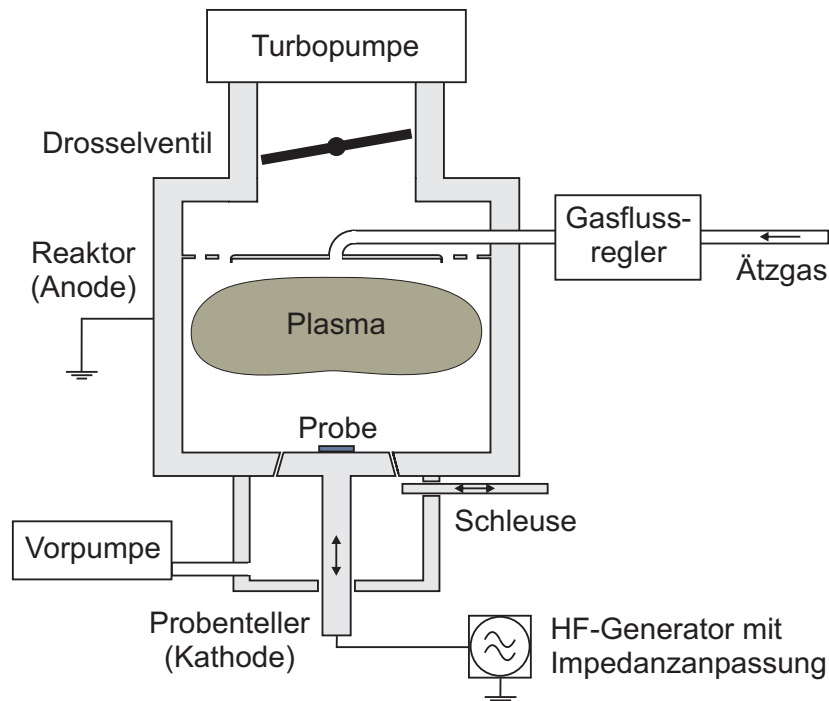


Abbildung 5.4: Schematische Darstellung der verwendeten Anlage zur Strukturübertragung von elektronenlithographisch erzeugten Zonenplattenstrukturen mittels reaktiven Ionenätzen.

ein Plasma, d. h. eine Gasentladung, bestehend aus Ionen, geladenen Atomen und Molekülen, sowie freien Radikalen (ladungsneutrale, hochreaktive Moleküle) erzeugt. Die neutralen Radikale diffundieren unbeeinflusst vom elektrischen Feld ungerichtet zum Substrat und reagieren dort mit der Oberfläche. Die geladenen Ionen hingegen werden mittels eines elektrostatischen Feldes in Richtung des Substrates beschleunigt. Somit wird die anisotrope, chemische Ätzkomponente durch einen isotropen, physikalischen Ätzprozeß unterstützt [62]. Die Ionisationsgrade der verwendeten Gase in einem solchen Plasma betragen ca.  $10^{-4}$  bis  $10^{-3}$  [72]. Die positiv geladenen Teilchen werden aufgrund der Potentialdifferenz zwischen Kathode und Anode auf das Substrat gelenkt. Mittels geringer Gasdrücke von  $10^{-3}$  -  $10^{-2}$  mbar werden dabei die freien Weglängen der Ionen erhöht, Stöße zwischen den geladenen Teilchen minimiert und somit hohe

## 5 Nanostrukturierung von Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie

Ionen-Beschleunigungsspannungen ermöglicht. Die Potentialdifferenz zwischen Plasma und Substrat muss so gewählt werden, daß eine hohe Anisotropie ohne signifikante Sputterprozesse erzielt wird. Sputterprozesse werden durch eine hohe Beschleunigung der Ionen begünstigt und führen zu einer Zerstörung der Ätzmaske und somit zu Abweichungen in der Strukturübertragung. Ebenso muss für den Ätzgasdruck ein Kompromiß gefunden werden. Ein geringer Druck führt zu einer erhöhten freien Weglänge der erzeugten Ionen und somit zu einer gesteigerten Anisotropie des Ätzprozesses. Im Gegensatz dazu muss der Gasdruck hoch genug sein, um eine stabile Gasentladung im Plasma zu gewährleisten. Die Prozessparameter der im Rahmen dieser Arbeit angewandten Trockenätzprozesse sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Der zweite Ätz-

Ätzgas	Substrat	Gasfluß [sccm]	Druck [mbar]	Leistung [W]	$U_{\text{BIAS}}$ [kV]	$C_T / C_L$ [ $\mu\text{F}$ / $\mu\text{F}$ ]	Ätzrate [nm/min]
$\text{BCl}_3$	Ge Ti	10	0.02	72	0.4	496 / 277	2 1
Ar / $\text{O}_2$	–	20 / 20	0.0266	92	0.5	500 / 280	–
$\text{O}_2$	Polymer	20	0.01	92	0.5	504 / 281	40 - 60

Tabelle 5.1: Parameter der zur Strukturübertragung angewandten reaktiven Ionenätzprozesse. Der Ar /  $\text{O}_2$  Ätzprozeß wird zur Reinigung des Reaktors nach dem  $\text{BCl}_3$ -Ätzen eingesetzt.

prozeß in Tabelle 5.1 mit einem Gasgemisch aus Argon und Sauerstoff dient zur Reinigung des Reaktors nach dem  $\text{BCl}_3$ -Ätzen und soll mögliche Chlorid-Rückstände im Reaktorinnenraum entfernen [84]. Zusätzlich wird auch das zu ätzende Substrat durch Spülen in deionisierten Wasser, Isopropanol und Pentan von Chlor-Verbindungen gereinigt. In den Abbildungen 5.5 (a) und (b) ist eine durch reaktives Ionenätzen auf einem Silizium-Substrat hergestellte ARC-XL20-Galvanoform einer Zonenplatte mit 30 nm äußerer Zonenbreite dargestellt. Die Zonenhöhe der Polymerstrukturen beträgt ca. 190 nm, was einem Aspektverhältnis von ca. 6.3 : 1 entspricht. Im Rahmen dieser Arbeit konnten in unbehandeltes ARC-XL20 Strukturen mit maximalen Aspektverhältnissen von 6.5 : 1 übertragen werden. Die mechanische Stabilität und somit das erreichbare Aspektverhältnis können durch Strahlungsvernetzen des verwendeten Polymers gesteigert werden. Ein entsprechender Prozeß wird in Abschnitt 5.2.2 beschrieben.

### 5.1.4 Galvanisieren von Nickel-Zonenplatten

Die Nickelzonenstrukturen werden mittels galvanischer Abscheidung, d. h. der Abscheidung von Metallen durch Elektrolyse aus Lösungen mit Metallsalzen, erzeugt. Dazu wird die zu beschichtende, kontaktierte Probe und eine zweite Elektrode in die Elektrolytlösung getaucht. Wird eine Spannung angelegt, werden die gelösten Metallionen an der Probeoberfläche (Kathode) entladen und scheiden sich ab. Die vereinfachte

## 5.1 Tri-Level-Prozeß zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplatten

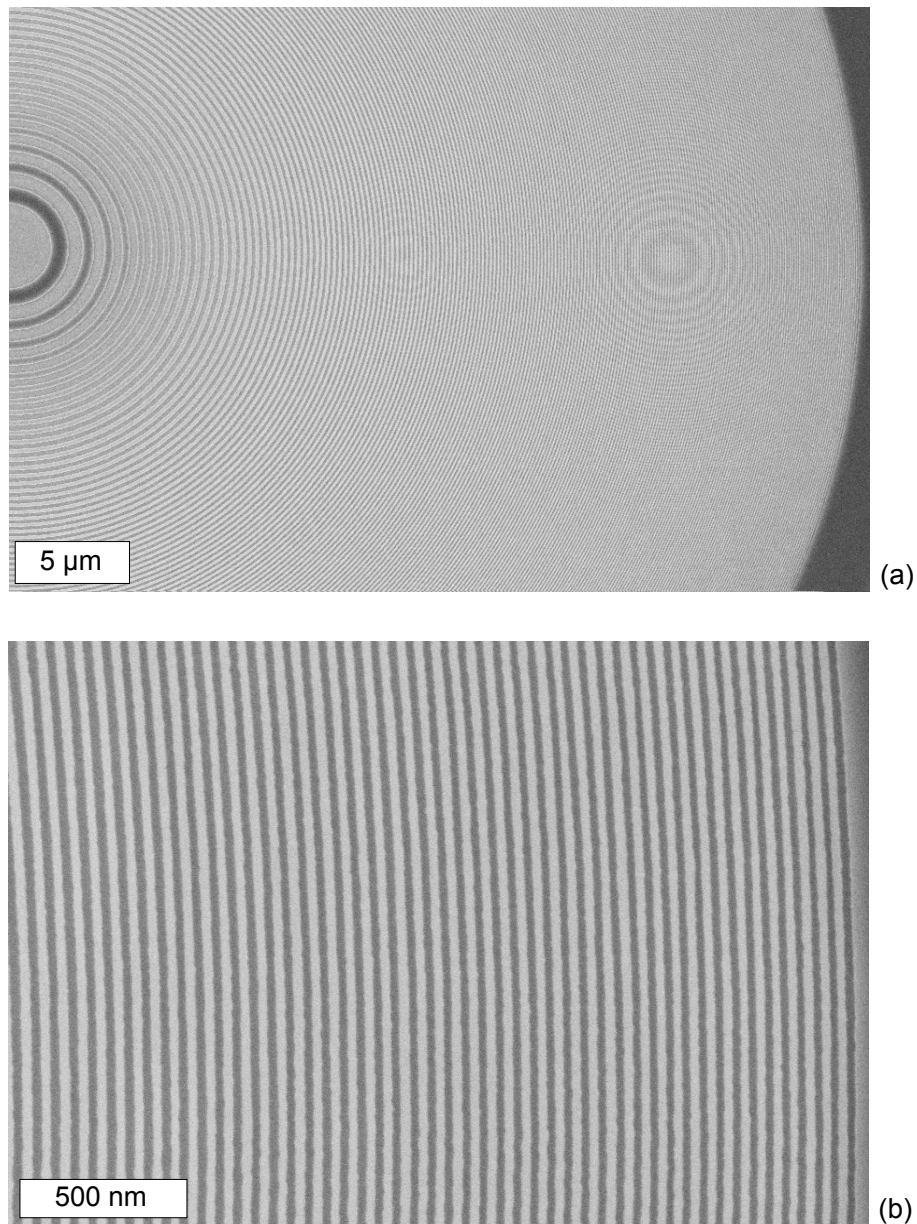


Abbildung 5.5: Galvanoform einer Zonenplatte mit einer äußerer Zonenbreite von 30 nm auf einem festen Silizium-Substrat nach der Strukturübertragung mittels reaktiven Ionenätzen. Dargestellt sind (a) ein Überblick und (b) die äußeren Zonen der Zonenplattenstrukturen.

Reaktionsgleichung für die Nickelabscheidung lautet:



Die Reaktion der Metallionen an der Kathode geschieht in mehreren Teilreaktionen [14]. Beim Zuschalten der Spannung wird zunächst um die Kathode eine an Ionen verarmte Grenzschicht erzeugt. Die zuvor frei geätzte Chrom-Germanium-Platierung mit einer Gesamtfläche von  $1 - 10 \text{ mm}^2$  bildet dabei die Kathode. Der Transport der Ionen wird durch das angelegte elektrische Feld und Diffusion in der Lösung bis auf wenige Nanometer an die Kathode realisiert. Anschließend lösen sich die Metallionen von ihrer Komplexhülle und werden in den Metallkristall eingelagert. Die Metallabscheiderate wird dabei durch die langsamste Teilreaktion bestimmt. Um den Abscheideprozeß zu starten muss eine gewisse Schwellspannung überschritten werden. Mit geeigneten Inhibitoren können die Teilschritte so beeinflusst werden, dass die Stromausbeute an der Kathode mit steigender Stromdichte nicht zunimmt und man erhält einen Elektrolyten, der auch in vertieften Bereichen mit hohen Aspektverhältnissen und kleinen lokalen Stromdichten eine ausreichende Abscheiderate liefert. Daher werden vielen Galvanikbädern Inhibitoren und weitere Zusatzstoffe zugesetzt, um die Abscheiderate, die Benetzungseigenschaften des Elektrolyten und die Eigenschaften der abgeschiedenen Metallschichten zu verbessern [92].

Für die Herstellung von Nickelzonenplatten wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Nickelsulfamat-Elektrolyt (LECTRO-NIC 10-03 S) eingesetzt. Galvanikbäder mit Nickelsulfamationen ( $\text{Ni}(\text{SO}_3\text{NH}_2)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) zeichnen sich durch ihre hervorragende Abscheideeigenschaften in Mikro- und Nanostrukturen und durch geringe Spannungen in den erzeugten Metallschichten aus [25]. Der pH-Wert des Elektrolyten wurde durch Zugabe von Sulfaminsäure auf 3.5 eingestellt. Die Nickelkonzentration in dem verwendeten Elektrolyten betrug  $75 \text{ g/l}$ . Um den Abscheidevorgang beobachten und rechtzeitig stoppen zu können, wurde die Galvanisierung in einer Apparatur mit einem eingebundenen Auflichtmikroskop mit Differentialinterferenzkontrast (engl. Differential Interference Contrast - DIC) durchgeführt. Die radialen quasi-periodischen Gitterstrukturen von Zonenplatten erzeugen im DIC-Modus aufgrund der Wechselwirkung mit dem polarisierten Licht des Mikroskopes ein charakteristisches Kreuzmuster (siehe Abbildung 5.19) [110]. Dieser optische Effekt verliert mit zunehmender Nickelhöhe in den Polymerstrukturen an Kontrast und verschwindet sobald die Galvanoform komplett aufgefüllt ist. Durch den sinkenden Kontrast kann die Nickelfüllhöhe der Galvanoform abgeschätzt werden, um ein mögliches Übergalvanisieren der Strukturen zu verhindern. Um eine geringe Abscheiderate und eine möglichst hohe resultierende Abscheidungsdauer zu gewährleisten, wurden die Nickelstrukturen bei einem niedrigen Strom von  $2 \text{ mA}$  galvanisiert. Unter Verwendung dieser Parameter ergaben sich Abscheideraten zwischen  $90 - 120 \text{ nm/min}$ . Die daraus resultierende Abscheidungsdauer liegt zwischen  $1.5 - 2 \text{ min}$  für  $180 \text{ nm}$  hohe Nickelstrukturen. Mit diesen Parametern auf einem Silizium-Substrat erzeugte Nickelzonenplattenstrukturen sind in Abbildung 5.6 gezeigt. Da die Abscheiderate während des Abscheideprozesses stark mit der lokalen Stromdichte variiert, kommt es bei der Gleichstrom-Galvanisierung von Zonen-

### 5.1 Tri-Level-Prozeß zur Herstellung von hochauflösenden Zonenplatten

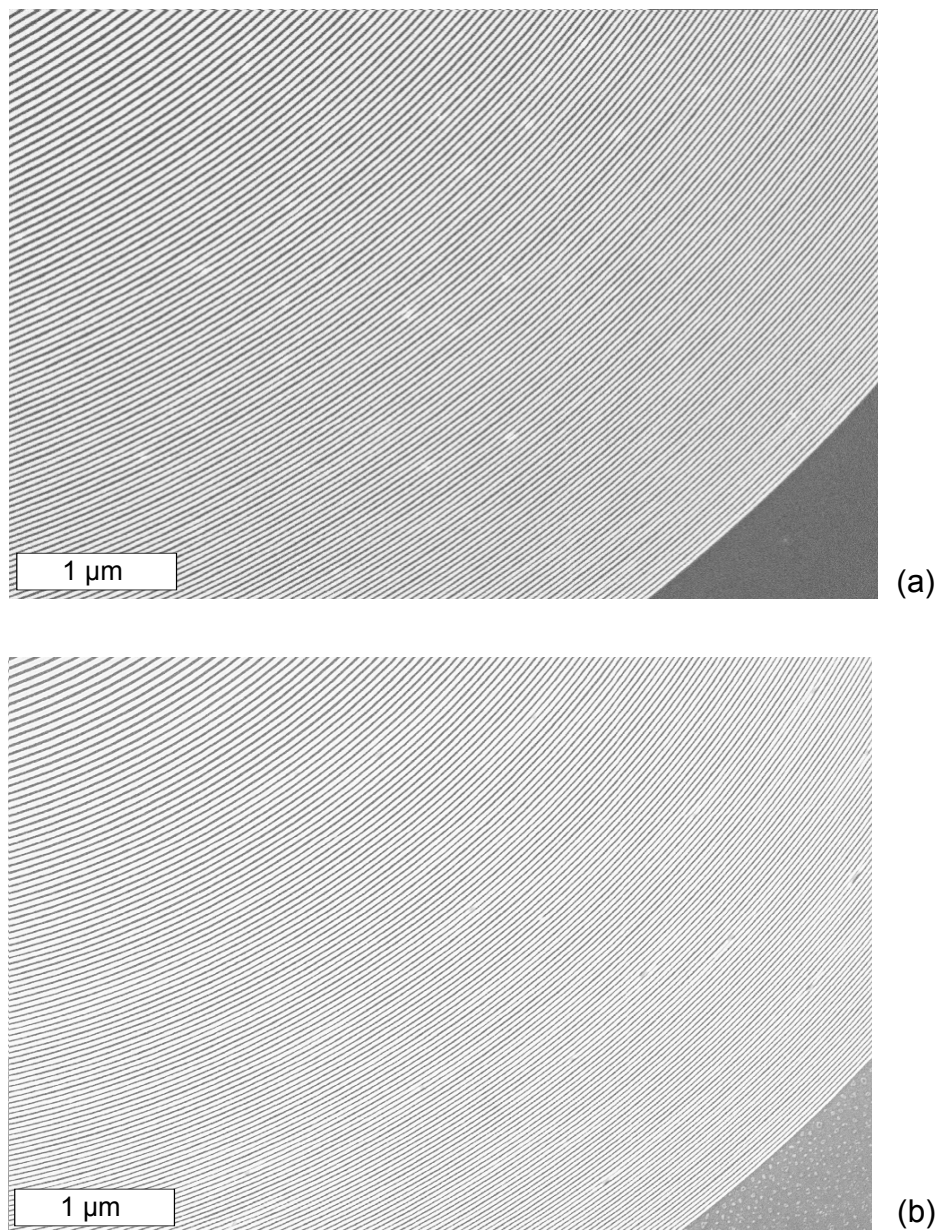


Abbildung 5.6: Nickelzonenplattenstrukturen auf Silizium-Substrat mit Zonenbreiten von 30 nm und Zonenhöhen von 190 nm (a) nach dem Galvanisieren in der Galvanoform und (b) nach dem Entfernen der Ätzmaske und der Polymerform.

platten zu einem charakteristischen Höhenprofil der Nickelstrukturen. Aufgrund der unterschiedlichen Aspektverhältnisse zwischen den breiteren, inneren und den feineren, äußeren Zonen, fällt die resultierende Nickelhöhe vom Zonenplatteninnern nach außen hin ab (siehe Abb. 5.10). In der Literatur wird berichtet, daß dieser Effekt durch den Einsatz von Puls- und Reverse-Puls-Galvanisierung signifikant verringert werden kann [68]. Dazu wird ein gepulster bzw. alternierend gepulster Strom bei der Abscheidung angelegt, um die Stromdichteverteilung an der Kathode und somit die Oberflächenbeschaffenheit und die Profilhöhe der galvanisierten Strukturen zu verbessern. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dieses Verfahren nicht eingesetzt, da für die gepulste Abscheidung eine sehr hohe Stromdichte und daraus resultierend sehr kleine, definierte Kontaktflächen erforderlich sind, wie sie bei den hergestellten Proben nicht vorlagen.

Für den Einsatz der hergestellten Nickel-Zonenplatten im weichen Röntgenbereich wurden im Anschluß an die galvanische Abscheidung zunächst die Titanmaskierung und anschließend die Polymer-Galvanoform durch reaktives Ionenätzen mit den zuvor beschriebenen Parametern entfernt, um eine ausreichende Röntgentransmission zu gewährleisten.

### 5.2 Verfahren zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten

Zur Fabrikation von Multi-Lagen-Zonenplatten mußte der im vorangegangenen Abschnitt beschriebene Herstellungsprozeß für konventionelle Einzel-Lagen-Zonenplatten um mehrere Teilprozesse erweitert werden. Abbildung 5.7 zeigt die einzelnen Prozessschritte und das dazu benötigte Schichtsystem für die Herstellung von geeigneten Zonenstrukturen durch Übereinanderlagern von Einzel-Zonenplatten mit abnehmenden Zonenradien. Zunächst wird die erste Zonenplattenschicht in dem bereits beschriebenen Tri-Level-Prozeß durch Elektronenstrahlolithographie, Trockenätzen und galvanische Abscheidung erzeugt. Um eine zweite Zonenplatte auf den so strukturierten Zonen platzieren zu können, muss die Galvanoform der ersten Schicht exakt aufgefüllt werden. Dazu werden die Polymerstrukturen der ersten Zonenplatte beim Galvanisieren leicht überfüllt und das überstehende Nickel anschließend in einem Planarisierungsschritt wieder entfernt. Dieser Polierprozeß ermöglicht das komplette Auffüllen der ersten Zonenplatten-Galvanoform und erzeugt zusätzlich einen ebenen Untergrund für das folgende Zonenplattenschichtsystem. Damit die Galvanoform den mechanischen Belastungen während des Polierens standhält, wird das verwendete Polymer vor der Strukturierung durch Strahlungsvernetzen gehärtet. Dazu wird der Kunststoff großflächig mit Elektronen bestrahlt.

Um eine Kontaktierung für das Galvanisieren der zweiten Zonenstrukturen zu gewährleisten wird eine dünne, leitende Zwischenschicht bestehend aus 3 nm Chrom und 5 nm Germanium auf die polierten Zonen aufgedampft. Anschließend wird das Schichtsystem für die Strukturierung der nächsten Zonenplattenlage aufgebracht. Mittels geeigneter Marken auf dem Substrat der Probe, werden die Strukturen der zweiten Schicht bei der Elektronenstrahlolithographie exakt zu der darunter befindlichen Zonenplatte ausgerichtet. Die lithographisch erzeugten Zonenstrukturen der zweiten Schicht



## 5.2 Verfahren zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten

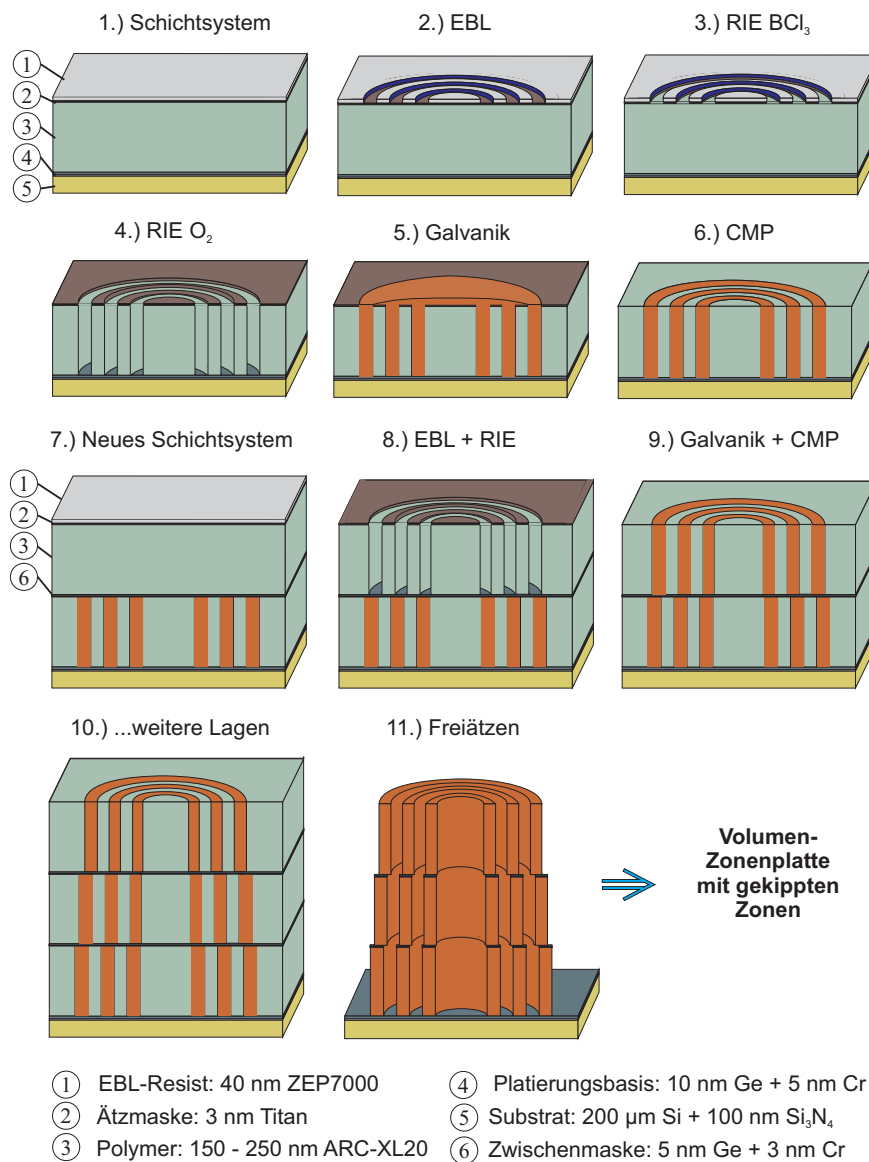


Abbildung 5.7: Teilprozessschritte zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten mit geeigneten Zonenstrukturen. Der konventionelle Tri-Level-Prozess (siehe Abschnitt 5.1) wird durch einen Planarisierungsschritt und Overlay-Elektronenstrahlolithographie ergänzt und für die Prozessierung der einzelnen Zonenplattenschichten eingesetzt. Die Strukturen werden auf einem dicken Silizium-Substrat hergestellt, welches abschließend nass-chemisch gedünnt wird.

werden nach dem Entwickeln wiederum durch Trockenätzen in die Maskierungs- und Polymerschicht übertragen. Die Chrom-Germanium-Schicht zwischen den beiden Zonenplattenlagen dient dabei als Ätzstop beim reaktiven Ionenätzen mit Sauerstoff. Die Galvanoform der zweiten Schicht wird nachfolgend durch galvanische Abscheidung mit Nickel aufgefüllt und ebenfalls planarisiert. Dieses Verfahren wird wiederholt bis die gewünschte Anzahl an Zonenplattenlagen erreicht ist.

Da der Planarisierungsprozeß der einzelnen Schichten nicht auf dünnen Membranen durchgeführt werden kann, werden die Multi-Lagen-Zonenplatten zunächst auf einem 200  $\mu\text{m}$  dickem Siliziumsubstrat mit einer 100 nm Siliziumnitrid-Schicht prozessiert. Um eine ausreichende Transmission der hergestellten Optiken im verwendeten Röntgenenergiebereich zu erzielen, muss das Substrat nach der Strukturierung der Zonenstrukturen rückseitig nass-chemisch gedünnt werden, so daß nur die Siliziumnitridschicht als Trägermaterial für die Zonenplatte erhalten bleibt. Abschließend wird das Polymer zwischen den Nickelstrukturen durch reaktives Ionenätzen entfernt. Die folgenden Abschnitte beschreiben ausführlich die Anforderungen und Parameter der speziell für die Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten entwickelten Teilprozessschritte.

### 5.2.1 Chemisch mechanisches Polieren von Zonenplatten aus Nickel

Eine Schwierigkeit bei der Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten besteht darin, die strukturierten Galvanoformen beim Galvanisieren komplett zu füllen, damit die Nickelstrukturen der folgenden Zonenplattenschichten direkt auf den darunterliegenden Zonen aufgebracht werden können. Zusätzlich muss ein mögliches Überfüllen der Polymer-Strukturen mit Nickel verhindert werden, da dies zur Zerstörung der Zonenplattenstruktur führt. Ein Ansatz zur Lösung dieses Problems ist die Intensitätsmessung von transmittierten, sichtbaren Licht durch die Zonenstrukturen während des Galvanikvorganges, um so das Auffüllen der Strukturen exakt an der oberen Kante der Galvanoform zu stoppen [44]. Diese Methode kann bei der Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten nicht angewandt werden, da die Absorption von sichtbaren Licht bereits beim Galvanisieren einer zweiten Zonenplattenschicht zu hoch ist.

Als Alternative wird ein Planarisierungsprozeß basierend auf chemisch mechanischen Polieren (engl. Chemical Mechanical Polishing - CMP) eingesetzt [88], um die Oberfläche der Zonenstrukturen nach absichtlichen Überfüllen der Galvanoform einzuebenen. Obwohl chemisch mechanische Polierprozesse für Strukturen aus Nickel und Nickellegierungen bereits untersucht [26, 55] und angewendet wurden [24, 64], kamen sie bei der Herstellung von Strukturen mit Dimensionen im Nanometerbereich und bei der Prozessierung von Zonenplatten bisher nicht zum Einsatz. Beim CMP wird die aus zwei verschiedenen Materialien bestehende Oberfläche mit Hilfe einer Kombination aus chemischen und mechanischen Kräften geebnet. Der Prozeß basiert auf einer Mischung aus chemischen Ätzen und einem Schleif-Polier-Prozeß. Mechanisches Schleifen allein verursacht zu hohe Schäden auf der zu schleifenden Oberfläche, während alleiniges Nassätzen keine ausreichende Planarisierung ermöglicht. Wie in Abbildung 5.7 Prozessschritt 5 dargestellt wird die Galvanoform während des Galvani-

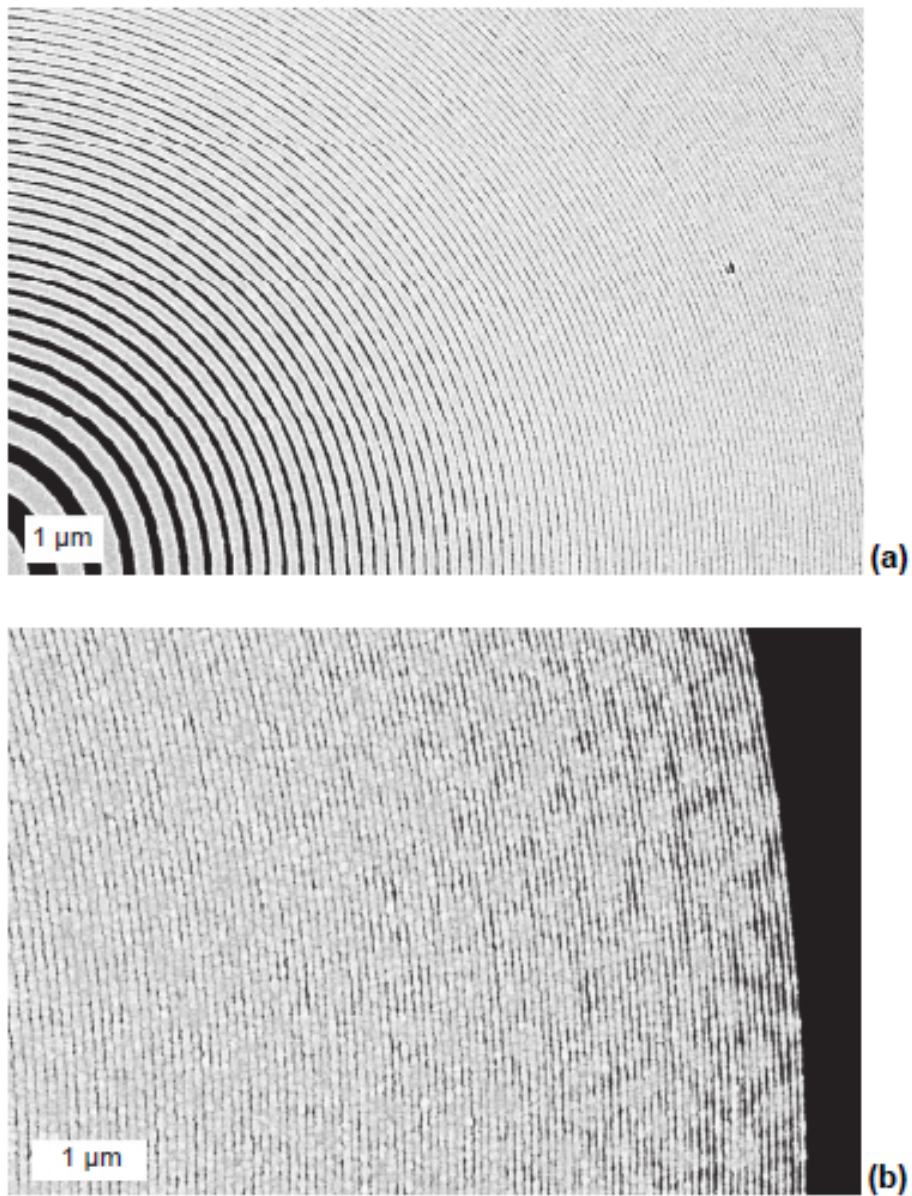


Abbildung 5.8: SEM-Aufnahmen der (a) inneren und (b) äußeren Zonenstrukturen einer Zonenplattenschicht mit  $dr_n = 30$  nm nach dem Überfüllen der strukturierten Galvanoform.

sierens um ca. 20 – 50 nm überfüllt, um ein komplettes Auffüllen der Polymerstrukturen zu gewährleisten. Die Abbildungen 5.8 (a) und (b) zeigen SEM-Aufnahmen der inneren und äußeren Zonen einer übergelvanisierten Zonenplatte mit einer äußeren Strukturbreite  $dr_n = 30$  nm. Anschließend wird das überliegende Nickel mit Hilfe des chemisch mechanischen Polierens entfernt. Nach dem CMP-Prozeß werden die polierten Zonenplattenstrukturen gespült und in einem Auflichtmikroskop mit Differentialinterferenzkontrast untersucht. Für den Fall, daß das übergelvanisierte Nickel bereits komplett abgetragen wurde, wird ein charakteristisches Kreuzmuster im DIC-Bild der Zonenplatte sichtbar (siehe Abschnitt 5.1). Gegebenfalls wird der CMP-Prozeß so lange fortgesetzt, bis das optische Muster deutlich erkennbar ist. Abschließend werden die polierten Nickelstrukturen im SEM untersucht, um sicher zu stellen, daß der Nickelüberschuss komplett entfernt wurde.

In ersten Versuchen wurden in eine Polymer-Form eingeschlossene Nickelstrukturen mit einem kommerziellen Polier-Pad und der Polier-Lösung MSW 1500 (RODEL Inc.) poliert, welche hauptsächlich für das chemisch mechanische Polieren von Wolfram eingesetzt wird. In früheren Veröffentlichungen wurde berichtet, daß diese Lösung gute Ergebnisse beim Polieren von FeNi-Mikrostrukturen eingebettet in SU-8 liefert [63], was der verwendeten Materialkombination von Nickel in ARC-XL20 sehr nahe kommt. Aufgrund der hohen mechanischen Belastungen während des CMP-Vorganges muss die Galvanoform jedoch vor dem Polieren gehärtet werden. Dies wird durch Strahlungsvernetzung des Polymers realisiert. Ein entsprechender Prozeß wird in Abschnitt 5.2.2 detailliert beschrieben. Da der quervernetzte Kunststoff keine chemische Reaktion mit der verwendeten Polierlösung eingeht, ist das Planarisieren des Polymers ein rein mechanischer Prozess. Die Haftung des gehärteten Polymers auf dem verwendeten Substrat ist ausreichend hoch, um ein Ablösen der Kunststoffform während des Polierens zu vermeiden. In den Abbildungen 5.9 (a) und (b) sind die polierten inneren und äußeren Zonen einer Zonenplatte mit 30 nm äußerer Zonenbreite dargestellt.

Die SEM-Aufnahmen der polierten Zonenplatte zeigen kleine Kratzer in den Nickelstrukturen. Die Tiefe dieser Kratzer ist jedoch mit wenigen Nanometern sehr gering, so daß die röntgenoptischen Eigenschaften der Zonenplatte nicht entscheidend beeinflusst werden. Die polierten Nickelzonen zeigen keine Verschiebung oder Ablösung. Während des Polierens wird die Titan-Maskierung ebenfalls entfernt, was ein späteres reaktives Ionenätzen der Probenoberfläche mit  $\text{BCl}_3$  zum Entfernen der Ti-Schicht überflüssig macht. Die Höhenprofile der polierten Nickel-Zonenplatten wurden mit einem Tencor P15 Linien-Scan-Profilometer gemessen. Da der Durchmesser der Profilometer-Messnadel zu groß für eine exakte Höhenmessung der Zonenstrukturen ist, wurde zusätzlich zu den Zonenplattenstrukturen ein  $7\text{ }\mu\text{m}$  breiter Ring prozessiert, welcher die äußersten Zonen in einem Abstand von  $3\text{ }\mu\text{m}$  umgibt. Diese Ringstruktur wurde auch für die Bestimmung der Galvanoformhöhe nach dem reaktiven Ionenätzen des Polymers mit Sauerstoff genutzt. Abbildung 5.10 zeigt Profilometer-Scans über eine Nickel-Zonenplatte mit 40 nm äußerer Zonenbreite nach dem Überfüllen der Galvanoform bei der Nickel-Galvanik (rote Linie) und nach dem chemisch mechanischen Polieren und dem Entfernen der Galvanoform (schwarze Linie). Die Profilometerdaten zeigen zwei breite Peaks an den Rändern der Zonenplatte, welche sich aus den um-

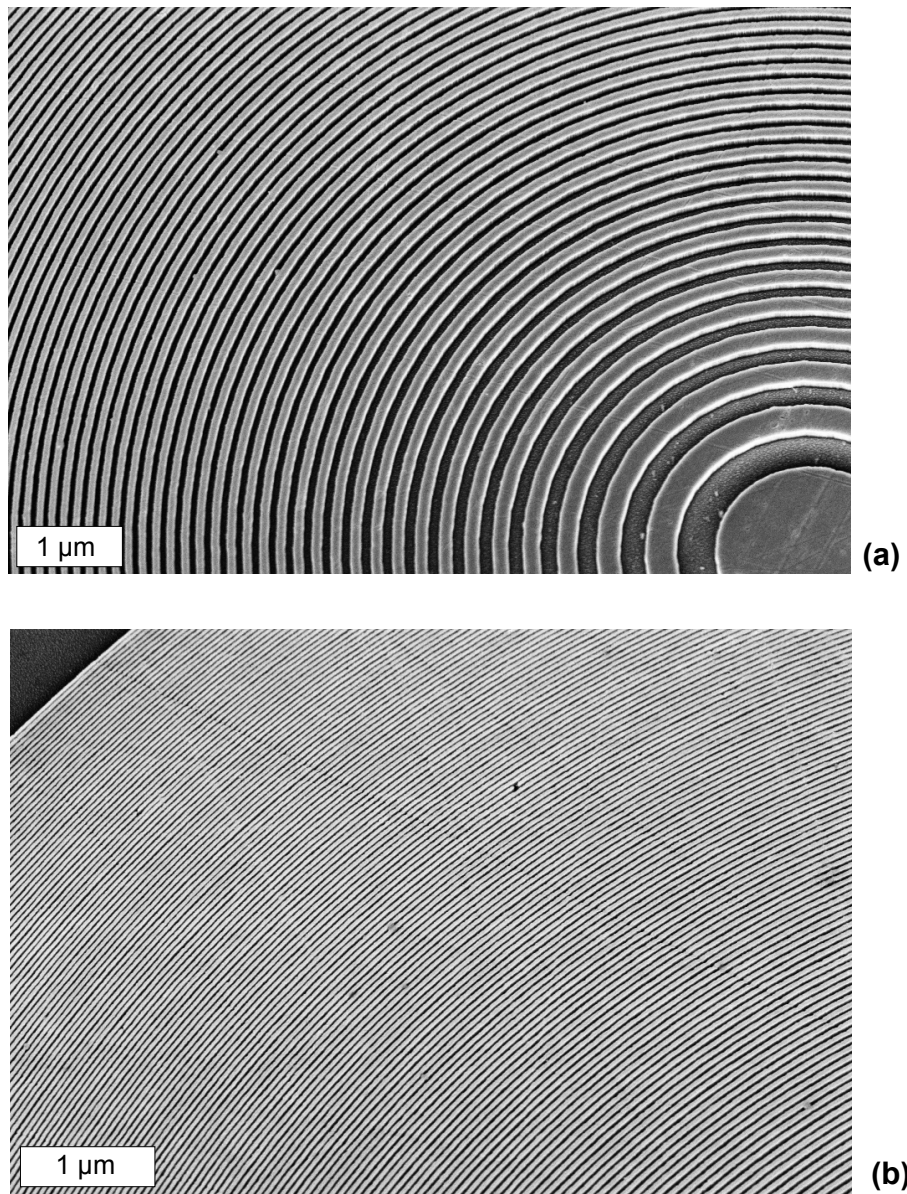


Abbildung 5.9: SEM-Aufnahmen von (a) innerer und (b) äußerer Zonen einer Zonenplatten mit  $dr_n = 30$  nm nach Anwendung des CMP-Prozesses. Die Strukturen wurden unter einem Kippwinkel von  $30^\circ$  aufgenommen.

gebenden Ringstrukturen ergeben. Da die eingebetteten Nickelstrukturen signifikant höher als die umgebende Galvanoform ist, verdeutlicht der obere Scan, dass die Polymerstrukturen um bis zu ca. 50 nm im inneren Bereich und 20 nm im äußeren Bereich überfüllt wurden. Die Ausgangshöhe der Galvanoform betrug ca. 200 nm. Wie bereits in Abschnitt 5.1 beschrieben, nimmt die Nickelhöhe der Zonenstrukturen abhängig von der Zonenbreite aufgrund von unterschiedlichen Stromdichten beim Galvanisieren nach außen hin ab. Das Höhenprofil der polierten Zonenplatte nach dem Entfernen der Polymerform zeigt finale Nickelhöhen zwischen 185 nm im inneren und 160 nm im äußeren Zonenplattenbereich. Die Höhenverteilung in Bezug auf den Zonenplat-

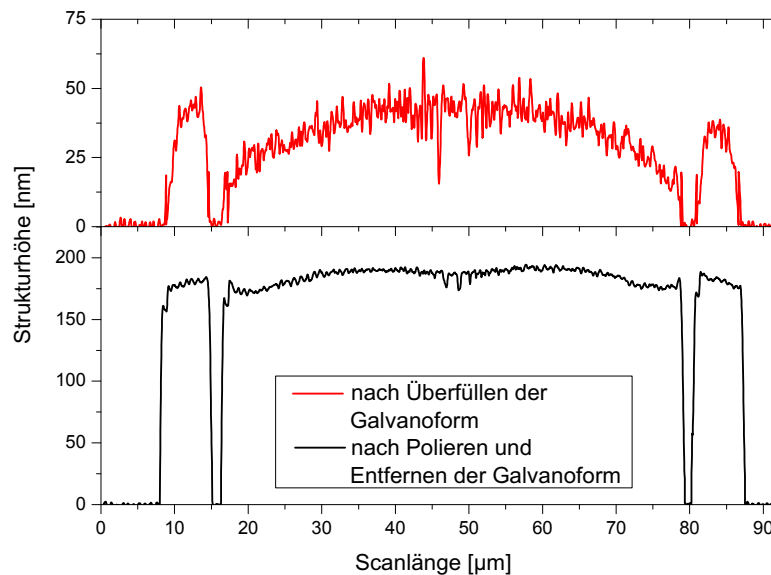


Abbildung 5.10: Profilometer-Line-Scans über Zonenplattenstrukturen mit äußeren Zonenbreiten von 40 nm nach dem Überfüllen der Galvanoform (rote Linie) und nach dem chemisch mechanischen Polieren und der Entfernung der Galvanoform (schwarze Linie).

tenradius ist vergleichbar zu dem Profil vor der Planarisierung. Somit zeigen sich keine signifikanten Änderungen am Höhenprofil der Nickelstrukturen durch den CMP-Prozeß. Der Höhenverlust der Galvanoform während des Polierens liegt zwischen 15 – 40 nm. Dieser Verlust muss bei der Herstellung der einzelnen Zonenplattenschichten einer Multi-Lagen-Zonenplatte einbezogen werden, da höhere Abweichungen der Nickel-Schichthöhe einen zunehmenden Einfluß auf die Eigenschaften der finalen Zonenstrukturen haben (siehe Abschnitt 4.3).

Der CMP-Prozeß kann aufgrund der mechanischen Belastungen während des Polierens nur auf einem dicken Substrat durchgeführt werden. Dieses muss nach der Zonenplattenprozessierung gedünnt werden, um eine ausreichende Röntgentransmission im



verwendeten Energiebereich zu erzielen. Abschnitt 5.2.4 beschreibt den dazu verwendeten nass-chemischen Ätzprozeß.

### 5.2.2 Strahlungsvernetzen von Polymeren mit Elektronen

Um eine ausreichende mechanische Stabilität der Galvanoform für den zuvor beschriebenen Planarisierungsprozeß zu gewährleisten, muss das verwendete Polymer zuvor gehärtet werden. Das Aushärten der Polymerschichten durch die Polymerisation beim thermischen Ausbacken ist durch eine eingeschränkte Diffusion der vorhandenen Monomere und kleinen Polymere im bereits gebildeten Netzwerk begrenzt. Eine Fortsetzung der Polymerisationsreaktion und somit eine Erhöhung des Vernetzungsgrades der Polymerschicht kann jedoch mit Hilfe von Strahlungsvernetzung erreicht werden [103, 128]. Dabei werden durch großflächige Bestrahlung des Polymers mit Photonen oder Elektronen räumlich homogen verteilte, reaktive Moleküle erzeugt, die Monomere und kurze Polymerketten im Polymer-Netzwerk einbauen und somit die langen Polymere stärker miteinander verknüpfen.

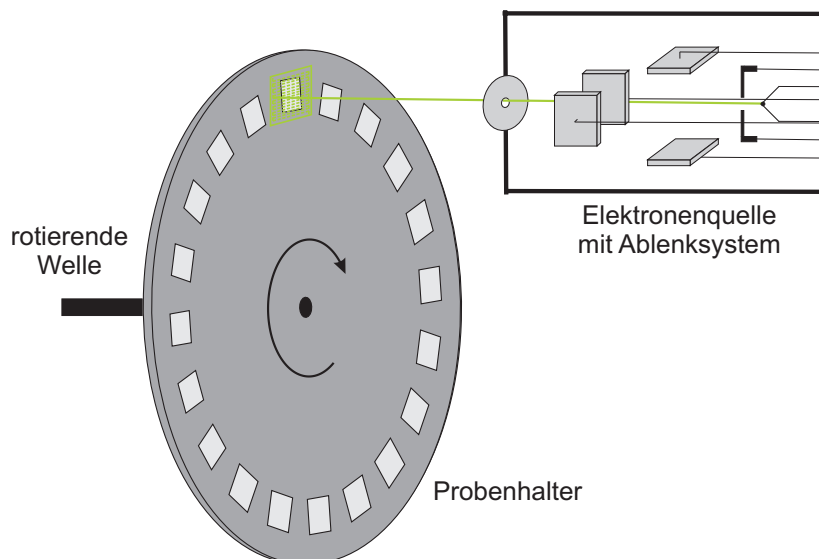


Abbildung 5.11: Schematische Darstellung des Aufbaus zum Strahlungsvernetzen von Polymeren mit Elektronen bestehend aus einer 5 keV-Elektronenquelle mit integrierten Fokussierungs- und Ablensystem und einem rotierenden Probenhalter.

Da jede einzelne Schicht der herzustellenden Multi-Lagen-Zonenplatten poliert und daraus resultierend gehärtet werden muss, musste ein unabhängiger, möglichst effizienter Vernetzungsprozeß etabliert werden. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit das Polymervernetzen mittels Elektronen zum Einsatz gebracht [69]. Im Vergleich zum früher angewandten Strahlungsvernetzen mit Röntgenstrahlung hoher Intensität [36,

84, 126] ermöglicht der Labor-Aufbau den Vernetzungsprozeß unabhängig von eingeschränkten Strahlzeiten am Elektronenspeicherring durchzuführen. Abbildung 5.11 zeigt schematisch den verwendeten Aufbau zum Strahlungsvernetzen von Polymeren mit Elektronen. Der benötigte Elektronenstrahl wird mittels einer Elektronenquelle EQ 22/35 (SPECS GmbH, Berlin) erzeugt und durch das integrierte Scan- und Ablenkssystem auf den Probenhalter fokussiert. Die Elektronen wurden mit einer Energie von 5 keV und einem konstantem Elektronenstrom  $I_e = 200 \mu\text{A}$  auf die Polymeroberfläche beschleunigt. Dazu wurde das Filament der Elektronenquelle mit einem Strom von 1.3 A bei einer Spannung von 0.5 V geheizt und eine Extraktionsspannung von ca. 200 V angelegt. Um die gesamte Probenoberfläche homogen zu bestrahlen, wurde der Elektronenstrahl mäanderförmig über eine  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  Fläche gerastert. Während des Bestrahlungsvorgangs verringert sich die Polymerhöhe kontinuierlich, wobei der Höhenverlust von der mittleren auf die Probe aufgebrachten Leistung abhängt. Um die Leistungsdichte auf den zu vernetzenden Proben zu reduzieren und den Schichtdickenverlust des Polymers zu minimieren, werden bis zu 20 Proben auf einem rotierenden Probenteller gleichzeitig bestrahlt. Die aufgebrachte Gesamt-Elektronendosis  $D_e$  wird beschrieben durch:

$$D_e = \frac{I_e}{A} \cdot t_{cl}, \quad (5.3)$$

wobei  $A$  die mit Elektronen bestrahlte Fläche und  $t_{cl}$  die Bestrahlungsdauer beschreiben. Vernetzungsversuche bei unterschiedlichen Strahlungsdosen haben gezeigt, daß die Polymerschichten ab einer aufgebrachten Elektronendosis von  $900 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  ausreichende Stabilität für den späteren Polierprozeß aufweisen. Nach Gleichung 5.3 ergibt sich mit den verwendeten Prozessparametern und unter Berücksichtigung der bestrahlten Kreisring-Fläche auf dem rotierenden Halter eine Gesamtbestrahlungsdauer von ca. 19 h für 20 Proben. Um Aufladungseffekte in den zu vernetzenden Polymerschichten zu verhindern, müssen diese auf eine leitende Schicht aufgebracht sein. Bei dem in dieser Arbeit angewandten Proben war dies durch die Platingbasis gewährleistet.

Die zunehmende mechanische Stabilität der vernetzten Kunststoffschichten führt zusätzlich zu einer Erhöhung des maximal erreichbaren Aspektverhältnisses der prozessierten Strukturen im verwendeten ARC-XL20 Polymer. In den Abbildungen 5.12 (a) und (b) sind SEM-Aufnahmen von linearen Gitterstrukturen nach der Strukturübertragung in die vernetzte Polymerschicht mittels RIE dargestellt. Die Linien wurden nach der Elektronenstrahlolithographie mit Hilfe einer Titan-Maskierung durch reaktives Ionenätzen in einem Sauerstoff-Plasma bis auf das Substrat übertragen (siehe Abschnitt 5.1). Die Polymerhöhe wurde mittels Profilometer-Messungen bestimmt und ergab ca. 190 nm für beide Gitterstrukturen. Die Gitterperiode beträgt in Abbildung 5.12 (a) 50 nm und (b) 40 nm bei einem Strich-Lücke-Verhältnis von 50%. Die resultierenden Aspektverhältnisse berechnen sich zu 7.6 : 1 und 9.5 : 1. Das Härten der Kunststoffschicht durch Strahlungsvernetzen mit Elektronen und die daraus resultierende verstärkte Polymerstabilität führen somit zu einer Steigerung des erzielbaren Aspektverhältnisses um bis zu 50% gegenüber dem maximalen Aspektverhältnis von kommerziellen, unvernetzten ARC-XL20 (siehe Abschnitt 5.1).



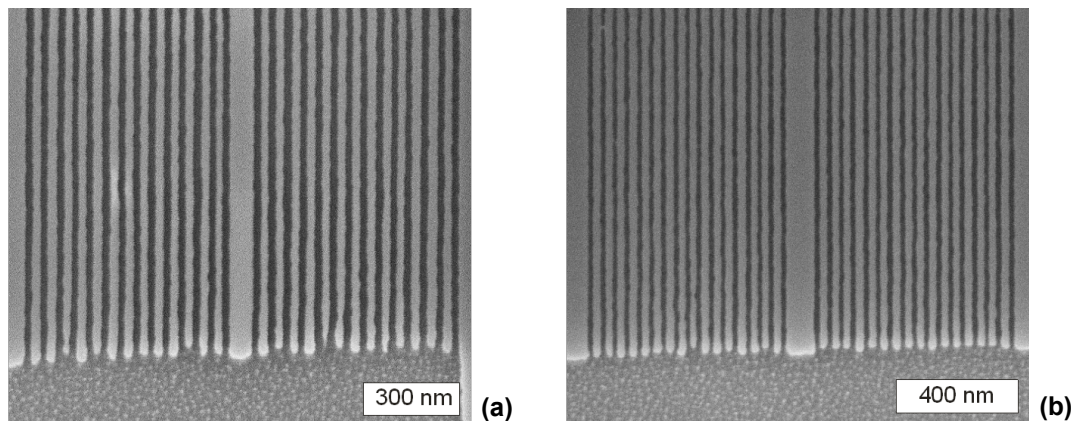


Abbildung 5.12: Lineare Polymergitterstrukturen in vernetztem ARC-XL20 mit (a) 50 nm und (b) 40 nm Periode nach der Strukturübertragung durch reaktives Ionenätzen. Die aufgebrachte Elektronendosis betrug  $900 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ . Das Aspektverhältnis der Polymerlinien beträgt (a) 7.6 : 1 und (b) 9.5 : 1.

### 5.2.3 Overlay-Elektronenstrahlolithographie

Einer der Prozessschritte mit den höchsten Genauigkeitsanforderungen bei der Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten ist die Overlay-Elektronenstrahlolithographie, bei der die zu belichtenden Strukturen mit Hilfe geeigneter Marken an eine darunterliegende Zonenplattenstruktur exakt angepasst werden. Wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, wird dabei eine sehr hohe Genauigkeit bei der Positionierung benötigt, damit die röntgenoptischen Eigenschaften der Zonenplatte nicht negativ beeinflusst werden. Um zum Beispiel mindestens 80% der Beugungseffizienz in fünfter Beugungsordnung von geeigneten Zonenstrukturen einer Multi-Lagen-Zonenplatte bestehend aus fünf Nickel-Lagen von je 180 nm Höhe zu erhalten, darf der Overlay-Fehler nicht größer als 6% der äußeren Zonenbreite sein. Dies entspricht in den durchgeführten Rechnungen einem Wert  $\leq 2 \text{ nm}$  (siehe Abschnitt 4.3). Um eine Abschätzung der Abweichungen bei der Zonenplattenpositionierung mit dem in dieser Arbeit verwendeten SEM-basierten Lithographiesystem (siehe Abschnitt 5.1) zu ermitteln, wurden zwei verschiedene Versuchsreihen durchgeführt und die daraus gewonnenen Ergebnisse statistisch betrachtet.

Zunächst wurde die Reproduzierbarkeit der Schreibfeldkalibrierung untersucht. Dazu wurde die Schreibfeldanpassung an Schreibfeldmarken, bestehend aus Rechteckstrukturen mit minimalen Strukturbreiten von 50 nm (siehe Abbildung 5.14), mehrfach hintereinander durchgeführt. Bei der Kalibrierung wird von jeder der vier verwendeten Schreibfeldmarken mit Hilfe des im SEM befindlichen Rückstreudetektors eine stark vergrößerte rasterelektronenmikroskopische Aufnahme angefertigt. Anhand dieser Aufnahmen werden in der externen Lithographie-Software die Schwerpunkte

## 5 Nanostrukturierung von Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie

der Marken durch den Benutzer festgelegt, welche anschließend für die Berechnung der Schreibfeldparameter genutzt werden. Diese Prozedur wird so lange wiederholt, bis die tatsächlichen Schwerpunkte nur noch minimal von den berechneten abweichen und somit eine hinreichende Genauigkeit bei der Markenerkennung erzielt wird. Um

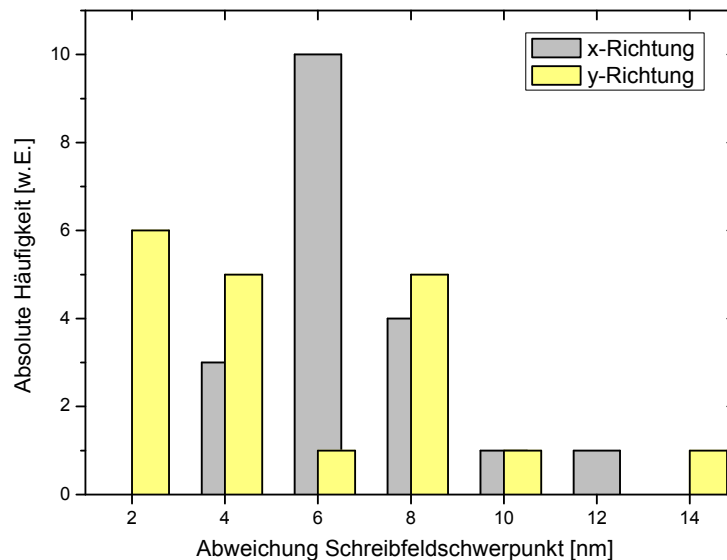


Abbildung 5.13: Häufigkeitsverteilungen der Abweichungen vom Schreibfeldmittelpunkt bei aufeinanderfolgenden Schreibfeldkalibrierungen in x- und y-Richtung.

eine Abschätzung für die Ungenauigkeit bei der Schreibfeldkalibrierung zu ermitteln wurden 20 Schreibfeldanpassungen durchgeführt und die zugehörigen Schreibfeldparameter bestehend aus Schreibfeld-Vergrößerung, -Drehwinkel und -Versatz in x- und y-Richtung notiert. Aus diesen Werten wurden anschließend mittels Koordinatentransformation die Schwerpunkte der zugehörigen Schreibfelder berechnet. Aus der Differenz der Werte des Schreibfeldmittelpunktes zur jeweils vorangegangenen Messung wurde der Schreibfeldversatz in x- und y-Richtung ermittelt. Die statistischen Häufigkeiten der so bestimmten Abweichungen sind in Abbildung 5.13 dargestellt. Sowohl in x- als auch in y-Richtung zeigt sich eine starke Streuung bei der Reproduzierbarkeit des Schreibfeldmittelpunktes. In x-Richtung wurden keine Abweichungen unterhalb von 2 – 4 nm ermittelt. Am häufigsten tritt ein Versatz zwischen 4 und 6 nm auf. In y-Richtung ergibt sich eine relativ gleichmäßige Streuung des Versatzes bis zu 8 nm. Die maximale Abweichung bei der wiederholten Schreibfeldkalibrierung beträgt bis zu 12 nm in x- und 14 nm in y-Richtung. Aus den Ergebnissen wird ersichtlich, daß die Schreibfeldkalibrierung aufgrund der subjektiven, optischen Bestimmung der Markenmittelpunkte durch den Benutzer mit einem unsystematischen Fehler behaftet ist. Diese Abweichungen lassen sich durch den Einsatz eines automatisierten Markenerkennungssystems auf

## 5.2 Verfahren zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten

der Basis von Kontrastunterschieden zwischen den Schreibfeldmarken und dem Hintergrund verringern.

In einem zweiten Versuch wurde mit Hilfe von speziellen Probelbelichtungen der Overlay-Fehler bei der Elektronenstrahlolithographie ermittelt. Dazu wurden die äußersten Zonen einer Mikrozonenplatte in zwei Belichtungssets bestehend aus den geraden beziehungsweise ungeraden Zonen aufgeteilt und mittels geeigneter Marken in zwei EBL-Schritten hintereinander belichtet. Die verwendete Belichtungsstrategie ist schematisch in Abbildung 5.14 dargestellt. Die komplette Prozessierung der Teststruk-

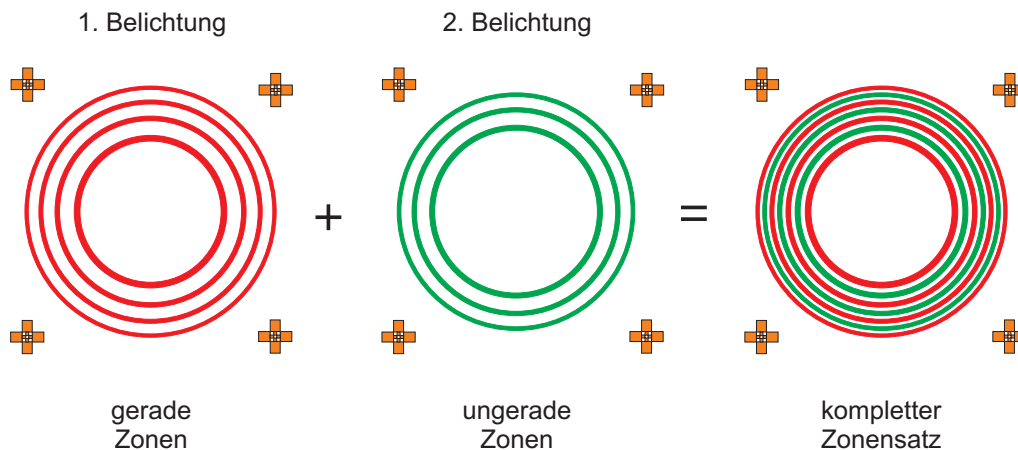


Abbildung 5.14: Schematische Darstellung der Belichtungsstrategie von zwei getrennten Belichtungssets bestehend aus den geraden bzw. ungeraden äußeren Zonen einer Zonenplatte zur Bestimmung des Overlay-Fehlers. Die Summe beider Belichtungen ergibt das resultierende Kreisgitter mit konstanter Periode.

turen wurde in drei Schritten durchgeführt. Zunächst wurden die Marken für die spätere Schreibfeldkalibrierung erzeugt. Um einen ausreichenden Kontrast bei der Schreibfeldausrichtung der folgenden Belichtungen zu erzielen, wurden die Schreibfeldmarken aus Nickel mittels des Tri-Level-Prozesses auf einem festen Si-Substrat prozessiert. Um eine möglichst exakte Ausrichtung des Schreibfeldes bei hoher Vergrößerung zu ermöglichen, wurden erneut nach innen kleiner werdende Rechteckstrukturen als Marken eingesetzt. Im zweiten Schritt wurde ein Belichtungsset bestehend aus jeder zweiten Zone an den zuvor prozessierten Marken ausgerichtet und belichtet. Daraufhin wurde die belichtete Probe aus dem Lithographie-System entfernt und neu eingeschleust. Im Anschluß wurden die verbleibenden Zonenstrukturen nach Ausrichtung an den Schreibfeldmarken in das gleiche Schreibfeld belichtet.

Nach den Belichtungen wurden die Kreisgitter-Strukturen entwickelt und SEM-Aufnahmen angefertigt. Aus den SEM-Abbildungen wurden per Linien-Scan in einer Bild-

bearbeitungssoftware die Grauwerte der einzelnen Bildpunkte in Abhängigkeit von der Scan-Richtung extrahiert und in ein entsprechendes Grauwert-Diagramm übertragen. Abbildung 5.15 (a) zeigt eines der SEM-Bilder mit einer Periode von 60 nm. Zusätzlich ist die Linien-Scan-Richtung über die radialen Gitterstrukturen angedeutet. Die

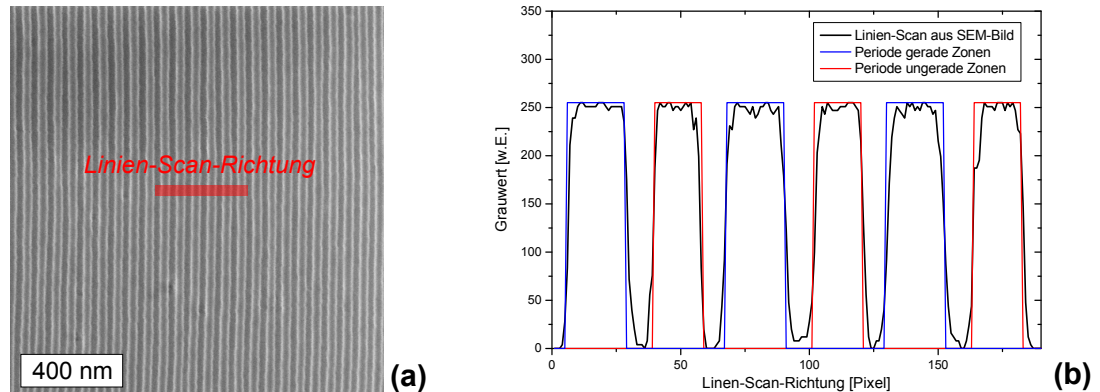


Abbildung 5.15: (a) SEM-Aufnahme von Kreisgitter-Strukturen, welche in zwei aufeinander folgenden EBL-Schritten erzeugt wurden. Die rote Markierung deutet den Linien-Scan an, mit dem die Grauwert-Verteilung der einzelnen Bildpunkte ausgelesen wurde. (b) Vergrößerter Ausschnitt der extrahierten Grauwert-Verteilung nach der Anpassung mit zwei unabhängigen Rechteckfunktionen.

Grauwert-Verteilungen wurden mit zwei periodischen Rechteckfunktionen mit individuellen Rechteck-Breiten, -Perioden und -Versatz angepasst. Diese Prozedur wurde für 16 Probelichtungen durchgeführt. Aus den gewonnenen Werten wurde der Versatz der zweiten Zonen zu den im ersten Schritt belichteten Strukturen berechnet. Die Genauigkeit dieser Methode ist dabei durch die Anzahl der Bildpunkte beschränkt, welche für die Auswertung genutzt werden. Zum einen muss die Vergrößerung möglichst hoch sein, damit die einzelnen Linien ausreichend Pixel beinhalten, zum anderen muss die Auswertung an einer ausreichend großen Anzahl von Gitterperioden erfolgen, um eine exakte Anpassung der Rechteckfunktion zu gewährleisten. Die Auswertung der Linien-Scans zeigte, daß die Grauwert-Verteilung von mindestens 20 Linienstrukturen hinreichend genau angepasst werden kann. Für die SEM-Aufnahmen wurde somit eine Vergrößerung gewählt, die in einer Pixelgröße von ca. 1 nm resultiert. Da die Anpassung der Rechteckfunktionen auf zwei Pixel genau durchgeführt werden kann, ergibt sich für die berechneten Overlay-Fehler eine Fehlertoleranz von  $\pm 2$  nm. Die statistische Häufigkeitsverteilung der ermittelten Overlay-Fehler im Rahmen der beschriebenen Fehlerwerte ist in Abbildung 5.16 dargestellt. Die Auswertung der radialen Gitterstrukturen ergibt Overlay-Fehler bis zu  $18 \pm 2$  nm. Positionsabweichungen von 4 – 6 nm treten dabei am häufigsten auf. Eine Abweichung  $\leq 2$  nm konnte nur bei einer einzel-

## 5.2 Verfahren zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten

nen Belichtung gemessen werden. Aus der Gauss-Anpassung ergibt sich ein mittlerer Overlay-Fehler von  $6 \pm 2 \text{ nm}$ . Der Mittelwert (MW) +  $3\sigma$  beträgt  $16 \pm 2 \text{ nm}$ , das heißt, daß 99.7% aller erzielbaren Overlay-Fehler innerhalb dieses Wertes liegen.

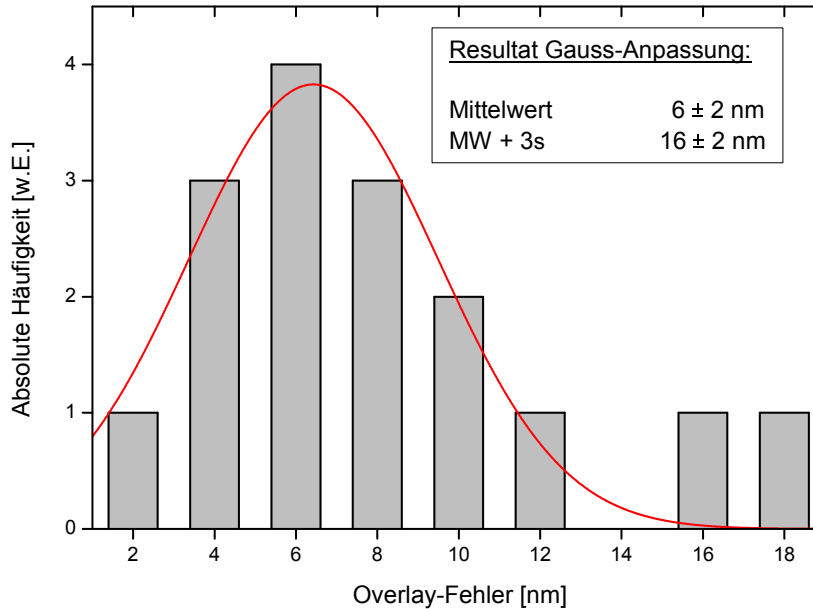


Abbildung 5.16: Häufigkeitsverteilung der aus SEM-Aufnahmen ermittelten Overlay-Fehler nach dem Belichten von radialen Gitterstrukturen in zwei getrennten, aufeinander folgenden EBL-Schritten. Die einzelnen Positionsabweichungen der Linienstrukturen vom Idealwert wurden auf 2 nm genau bestimmt. Ein Gauss-Fit der Verteilung (rote Linie) liefert den Mittelwert (MW) und den MW +  $3\sigma$ .

Zusammenfassend zeigt sich, daß das verwendete SEM-basierte EBL-System keine ausreichende Overlay-Genauigkeit für die exakte Positionierung der Zonenstrukturen bei der Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten mit geneigten Zonen und effektiven äußeren  $dr_n \leq 10 \text{ nm}$  liefert. Bereits die nicht automatisierte Schreibfeldkalibrierung hat unsystematische Abweichungen zur Folge, welche in einen mittleren Overlay-Fehler von  $6 \pm 2 \text{ nm}$  mit einfließen. Nur bei einer Overlay-Belichtung wurde die erforderliche Positionierungsgenauigkeit erreicht. Mit dem ermittelten MW +  $3\sigma$  ist die Reproduzierbarkeit bei den Overlay-Belichtungen zu niedrig, um eine hoch präzise Übereinanderlagerung der einzelnen Zonenplattenlagen einer Volumenzonenplatte zu ermöglichen.

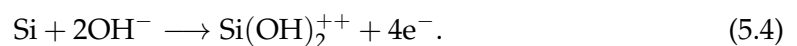
In der Literatur werden Overlay-Fehler  $\leq 2 \text{ nm}$  beschrieben [21, 22], welche mit-

tels automatisierter Markenerkennung basierend auf einem Kreuzkorrelations-Algorithmus [4] an speziell strukturierten Marken erzielt wurden. Zukünftig wird für die Belichtungen im Rahmen der Zonenplattenherstellung am Helmholtz-Zentrum Berlin ein neues, modernes Elektronenstrahlolithographie-System (EBPG5000PlusES, Vistec Electron Beam Lithography Group) eingesetzt. Dieses System ist mit einer automatischen Markenerkennung für die Schreibfeldkalibrierung ausgerüstet und zeichnet sich zusätzlich durch eine hohe Strahlstabilität und geringe Overlay- und Stitching-Abweichungen aus. Es bildet somit die Basis für weitergehende Entwicklungen zur Verbesserung der Overlay-Genauigkeit bei der Herstellung von übereinandergelagerten Volumenzonenplatten.

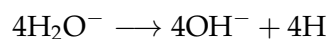
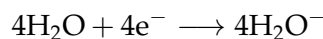
### 5.2.4 Nachträgliche Herstellung von Träger-Membranen für Multi-Lagen-Zonenplatten

Der in Abschnitt 5.2.1 beschriebene CMP-Prozeß zur Planarisierung der Nickel-Zonenstrukturen nach dem Überfüllen der zuvor strukturierten Galvanoform kann nicht auf einer dünnen Trägermembran durchgeführt werden, da diese keine ausreichende mechanische Stabilität besitzt, um den auftretenden Kräften während des Polierens zu widerstehen. Aus diesem Grund werden die Multi-Lagen-Zonenplatten zunächst auf einem 200  $\mu\text{m}$  dicken Siliziumsubstrat hergestellt. Für den Einsatz dieser Optiken im weichen Röntgenbereich muss dieses Substrat nach der Strukturierung der Zonenplatten gedünnt werden, um eine ausreichende Transmission der Röntgenphotonen zu gewährleisten. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Silizium dazu nass-chemisch in einer 30%-igen Kaliumhydroxid-Lösung (Kalilauge - KOH) geätzt und somit die spätere  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Trägermembran freigelegt.

Beim KOH-Ätzen eines Silizium-Einkristalls unterscheiden sich die Ätzgeschwindigkeiten entlang der verschiedenen Hauptkristallebenen um mehrere Größenordnungen. Die daraus folgende Anisotropie ermöglicht ein gerichtetes Abtragen der Siliziumschicht [62]. Dabei reagieren die Hydroxylionen der basischen Ätzlösung mit den Siliziumatomen an der Oberfläche des zu ätzenden Siliziums. Dies führt dazu, daß 4 Elektronen frei und ins Leitungsband injiziert werden:

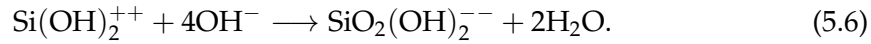


Der so entstandene Si-Komplex ist vom Kristallverband bereits isoliert und wird von der Kristalloberfläche nur aufgrund seiner positiven Ladung adsorbiert. Es bildet sich eine elektrolytische Doppelschicht aus den positiven Si-Komplexen und den frei gewordenen Elektronen im Kristall. Anschließend reagieren die Überschusselektronen mit an der Kristalloberfläche angelagerten Wassermolekülen:



## 5.2 Verfahren zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten

Diese Reaktion verhindert den weiteren Aufbau von negativen Ladungen im Si-Kristall. Zusätzlich fördern die entstehenden Hydroxylionen den weiteren Abbau der reaktionsbedingten Oberflächenschicht. Der Si-Komplex reagiert mit den  $\text{OH}^-$ -Ionen weiter zu:



Die dabei entstehenden negativ geladenen Siliziumkomplexe lösen sich im alkalischen Medium. Die Gesamtbruttogleichung für das Ätzen von Silizium mit KOH lautet:



Die für den Herstellungsprozeß genutzten Siliziumwafer wurden vor dem Strukturierungsprozeß beidseitig mit Siliziumnitrid beschichtet. Auf der Rückseite wurde in der  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Schicht vorab ein  $1 \times 1\text{mm}^2$  Fenster mittels Maskierung und Trockenätzenprozessen erzeugt (*Silson Ltd.*), welches die Fläche für den späteren Ätzangriff bildet. Während des Ätzvorgangs dient die rückseitige Siliziumnitrid-Schicht aufgrund der

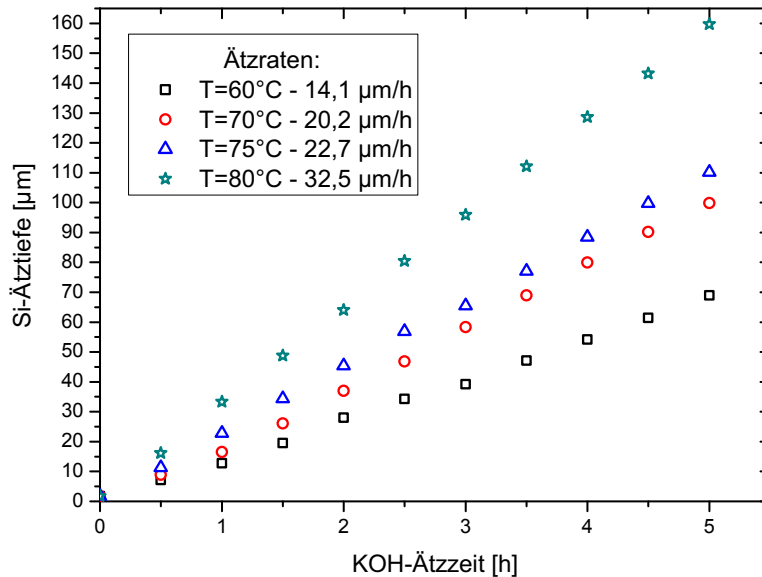


Abbildung 5.17: Silizium-Ätzrate in 30%iger Kaliumhydroxid-Lösung in Abhängigkeit von der KOH-Temperatur.

deutlich geringeren Ätzrate von  $\text{Si}_3\text{N}_4$  in KOH als Ätzmaskierung [42]. Sobald das  $200\text{ }\mu\text{m}$  dicke Silizium-Substrat komplett entfernt ist, wirkt die vorderseitige  $100\text{ nm}$  dicke  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Schicht als Ätzstop und bildet somit die spätere Trägermembran für die Zonenplattenstrukturen.

Zunächst wurden die erzielbaren Ätzraten der verwendeten 30%-igen KOH-Lösung



in Abhängigkeit von der eingestellten Ätzbad-Temperatur ermittelt (siehe Abbildung 5.17). Es wird ersichtlich, dass die Ätzrate mit steigender Temperatur stark zunimmt. Bei  $T_{\text{KOH}} = 60^\circ\text{C}$  werden ca.  $14\ \mu\text{m}$  Silizium pro Stunde abgetragen. Im Vergleich dazu wird die Ätzrate bei einer Temperatur von  $80^\circ\text{C}$  mit  $32\ \mu\text{m/h}$  mehr als verdoppelt. Möglichst hohe KOH-Temperaturen führen folglich zu kürzeren Ätzzeiten.

KOH-Ätzversuche mit Nickel-Zonenplattenstrukturen auf den zuvor beschriebenen Substraten haben gezeigt, daß die Metallstrukturen der Zonenplatten auf der nicht zu ätzenden Probenseite während des Ätzvorganges vor Reaktionen mit der alkalischen Lösung geschützt werden müssen. Zum Schutz der Nickelzonen wird auf die Vorderseite der Probe ein dünnes Deckglas aufgebracht, welches durch einen speziellen Heißklebewachs (*Minitron Elektronik GmbH*) mit der Probenoberfläche verbunden wird [2]. Dazu wird das Wachs auf einer Heizplatte bei  $150^\circ\text{C}$  auf dem Deckglas geschmolzen und die Probe mit der Vorderseite nach unten aufgebracht. Abbildung 5.18 zeigt schematisch die Einzelschritte des verwendeten KOH-Ätzprozesses. Um möglichst hohe

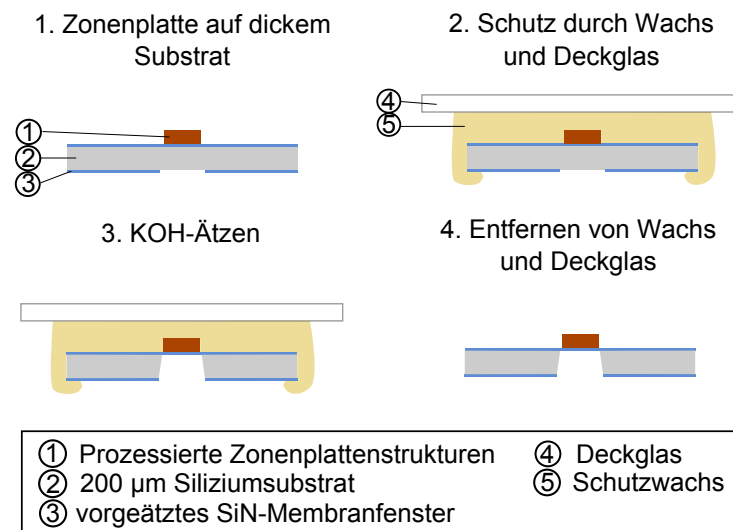


Abbildung 5.18: Schematische Darstellung der Prozessschritte für die Herstellung der Trägermembranen von Multi-Lagen-Zonenplatten durch nass-chemisches Ätzen mit KOH. Die Zonenplattenstrukturen werden während des Ätzprozesses durch Wachs und ein Deckglas geschützt.

Ätzraten bei einer gleichzeitig ausreichenden Stabilität des Schutzwachses zu erzielen, wurde die Temperatur der Kaliumhydroxid-Lösung auf  $60^\circ\text{C}$  eingestellt. Die resultierende Ätzzeit für  $200\ \mu\text{m}$  Silizium liegt bei ca. 14 h (vergleiche Abbildung 5.17). Trotz der relativ geringen KOH-Temperatur musste die schützende Wachsschicht während des Ätzvorganges mehrmals erneuert werden, um ein Eindringen von KOH zwischen dem Deckglas und der Probenoberfläche zu verhindern. Nach dem nass-chemischen



## 5.2 Verfahren zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten

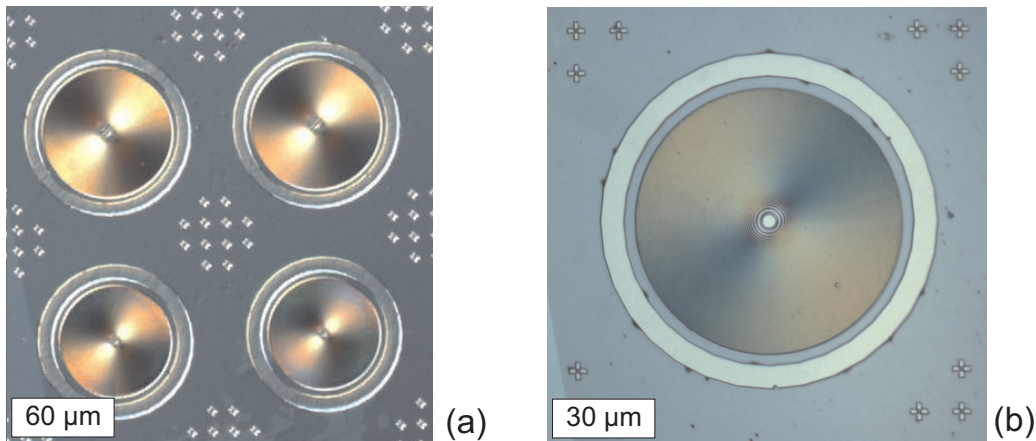


Abbildung 5.19: Lichtmikroskopische Aufnahmen von polierten Zonenplatten mit 40 und 30 nm äußeren Zonenbreiten auf einer 100 nm dicken  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Membran nach dem rückseitigen KOH-Ätzen des Substrates. Im linken Bildbereich ist die Kante zwischen Substrat und Membran ersichtlich.

Ätzen wird das Schutz-Wachs und das Deckglas für zwei Stunden in einem 65 °C warmen Methanol-Bad rückstandslos von der Probenoberfläche gelöst und die Probe durch abschließendes Spülen in Isopropanol und Pentan gereinigt. In den Abbildungen 5.19 (a) und (b) sind lichtmikroskopische Aufnahmen von Zonenplattenstrukturen mit äußeren Strukturbreiten von 40 und 30 nm nach der Herstellung der Siliziumnitrid-Trägermembran durch KOH-Ätzen dargestellt. Die Nickelzonenstrukturen zeigen keine Beschädigungen oder Verschiebungen durch das nachträgliche, rückseitigen Substratätzen. Im linken Bildbereich ist die Kante zwischen dem Si-Substrat und der  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Trägermembran ersichtlich. Nach der erfolgreichen Herstellung der Trägermembran wird das die Nickelstrukturen umgebende Polymer durch reaktives Ionenätzen entfernt. Aufgrund der für die Kontaktierung der einzelnen Zonenplattenlagen notwendigen Cr/Ge-Zwischenschicht wird abwechselnd mit Sauerstoff und  $\text{BCl}_3$  als Ätzgas gearbeitet.

Im folgendem Kapitel werden mittels des Stack-Prozesses hergestellte Multi-Lagen-Nanostrukturen beschrieben und mit Hilfe von elektronenmikroskopischen Untersuchungen charakterisiert. Anschließend wird der Einfluß von Herstellungsfehlern während der Nanofabrikation auf die Beugungseigenschaften der Strukturen mit Hilfe von Wirkungsgradmessungen experimentell bestimmt.



## 6 Herstellung und Charakterisierung von Multi-Lagen-Zonenplatten

Die folgenden Abschnitte umfassen die Anwendung des in Kapitel 5 beschriebenen Prozesses zur Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten. Um prinzipielle Probleme bei der Strukturierung auszuschließen und die optimalen Prozessparameter der neu entwickelten Herstellungsschritte zu ermitteln, wurden zunächst übereinandergelagerte lineare Gitterstrukturen prozessiert. Im Anschluß daran wurden die gewonnenen Erkenntnisse für die Herstellung von Multi-Lagen-Zonenplatten eingesetzt. Um einen signifikanten Anstieg der Beugungseffizienz in hohen Beugungsordnungen durch die theoretisch vorausgesagten Volumeneffekte in geneigten Zonenstrukturen zu erzielen, werden Gesamtstrukturhöhen  $\geq 1 \mu\text{m}$  (siehe Abschnitt 4.2) und eine Approximation des Neigungswinkels durch mindesten fünf Zonenplattenschichten benötigt. Wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, sind zusätzlich sehr hohe Genauigkeiten bei der Zonenpositionierung, der Einzel-Schichthöhe und dem Strich-Lücke-Verhältnis während der Herstellung dieser Röntgenoptiken erforderlich. Speziell die Anforderungen der hoch präzisen Positionierung der einzelnen Zonenlagen mit Overlay-Fehlern  $\leq 2 \text{ nm}$  konnte mit dem in dieser Arbeit genutzten SEM-basierten Elektronenstrahlolithographiesystem nicht reproduzierbar realisiert werden (vergleiche Abschnitt 5.2.3). Daher sollte im Rahmen dieser Arbeit zunächst durch Übereinanderlagerung von ungeneigten Zonenplattenstrukturen das erzielbare Aspektverhältnis der Zonen erhöht und daraus resultierend die Beugungseffizienz der Optiken im Röntgenenergiebereich  $> 500 \text{ eV}$  gesteigert werden.

Im Anschluß an die Prozessierung der Multi-Lagen-Zonenplatten und die Charakterisierung der Strukturen mittels SEM- und STEM-Aufnahmen wurden deren beugungsoptische Eigenschaften experimentell mit Hilfe von Beugungswirkungsgradmessungen bestimmt und mit den theoretisch zu erwartenden Werten verglichen. Auf diese Weise wurde der Einfluß von Ungenauigkeiten während der Zonenplattenherstellung untersucht.

### 6.1 Prozessierung von übereinandergelagerten linearen Gitterstrukturen

Um die optimalen Parameter der Teilprozesse des in Kapitel 5 beschriebenen Herstellungsverfahrens für Multi-Lagen-Zonenplatten zu ermitteln, wurden in ersten Versuchen übereinandergelagerte Lineargitter prozessiert [129]. Dazu wurden lineare Strukturen aus Nickel mit einer Länge von  $80 \mu\text{m}$  und Linienbreiten von 25, 30 und 40 nm

zusammen mit geeigneten Marken auf einem festen Silizium-Substrat angefertigt. Das Strich-Lücke-Verhältnis betrug 33%, woraus sich Gitterperioden von 75 – 120 nm ergeben. In den Abbildungen 6.1 (a) und (b) sind SEM-Aufnahmen der ersten Schicht von linearen Strukturen mit Linienbreiten von 25 nm nach dem Strukturieren der Galvanoform durch Trockenätzen und nach dem chemisch mechanischen Polieren der übergalvanisierten Gitter dargestellt. Im Anschluß an die Planarisierung der mit Nickel überfüll-

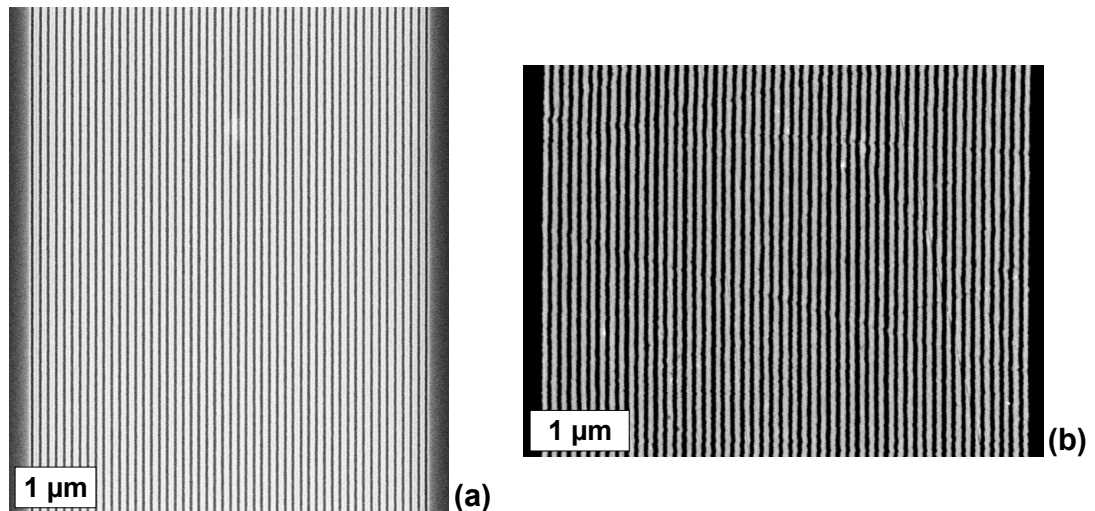


Abbildung 6.1: SEM-Aufnahmen der ersten Lage linearer Gitterstrukturen mit 25 nm Linienbreiten (a) nach der Strukturierung durch reaktives Ionenätzen und (b) nach dem Planarisieren der übergalvanisierten Nickelstrukturen mittels CMP.

ten Gitterstrukturen wurde ein zweites Schichtsystem aufgebracht. In Overlay-Belichtungen wurden lineare Gitter der gleichen Länge und Periode mittels der Schreibfeldmarken, welche zusammen mit der ersten Gitterlage prozessiert wurden, an den darunter befindlichen Strukturen ausgerichtet und belichtet. Anschließend wurden diese Strukturen entwickelt und mittels RIE in das zweite Schichtsystem übertragen. Da die Positionierungsgenauigkeit des verwendeten EBL-Systems bei Overlay-Belichtungen zu diesem Zeitpunkt noch nicht ermittelt werden war, wurde ein absichtlicher Versatz von 1 nm in die Periode der zweiten Gitterstrukturen eingefügt, so daß eine exakte Überlagerung der Linien an mindestens einer Stelle des Gitters erzielt wird. Die nach dem Trockenätzen entstandene Galvanoform der zweiten Struktur wurde ebenfalls mit Nickel aufgefüllt. Als Kontaktierung zwischen dem ersten und zweiten Schichtsystem diente eine dünne Platingsschicht bestehend aus 3 nm Chrom und 5 nm Germanium.

Um einen Blick auf den Querschnitt der übereinandergelagerten Strukturen zu gewährleisten, wurde mittels fokussierter Ionenstrahlen (engl. Focused Ion Beam - FIB) ein ca. 5 µm breiter Einschnitt senkrecht zu den Gitterlinien unter einem Schnittwin-

### 6.1 Prozessierung von übereinandergelagerten linearen Gitterstrukturen

kel von  $52^\circ$  erzeugt (D. Chumakov, Y. Ritz, GLOBALFOUNDRIES, Dresden). Die SEM-Aufnahme in Abbildung 6.2 (a) zeigt einen Überblick über die hergestellten Nickellinienstrukturen und den durch FIB erzeugten Graben. Die Querschnitte von linearen Gitterstrukturen mit Linienbreiten von 25 bzw. 30 nm sind in den Abbildungen 6.2 (b) und (c) hochaufgelöst dargestellt. Der Kippwinkel der SEM-Aufnahmen beträgt  $45^\circ$  und in beiden Fällen wurde die zweite Nickellage noch nicht poliert. Aufgrund der erhöhten Gitterperiode der zweiten Gitterlage wird ein zunehmenden Versatz der oberen Linien in Bezug auf die darunterliegenden Strukturen ersichtlich. Die Linien links in Abbildung 6.2 (b) zeigen keinen signifikanten Overlay-Fehler zwischen der ersten und der zweiten Lage. Im Vergleich dazu sind die Strukturen der zweiten Schicht im SEM-Bild 6.2 (c) bereits ab der ersten Linie gegenüber den unterliegenden Strukturen versetzt. Die Einzel-Schichthöhen der linearen Gitter betrug ca. 160 nm, was einer Gesamthöhe

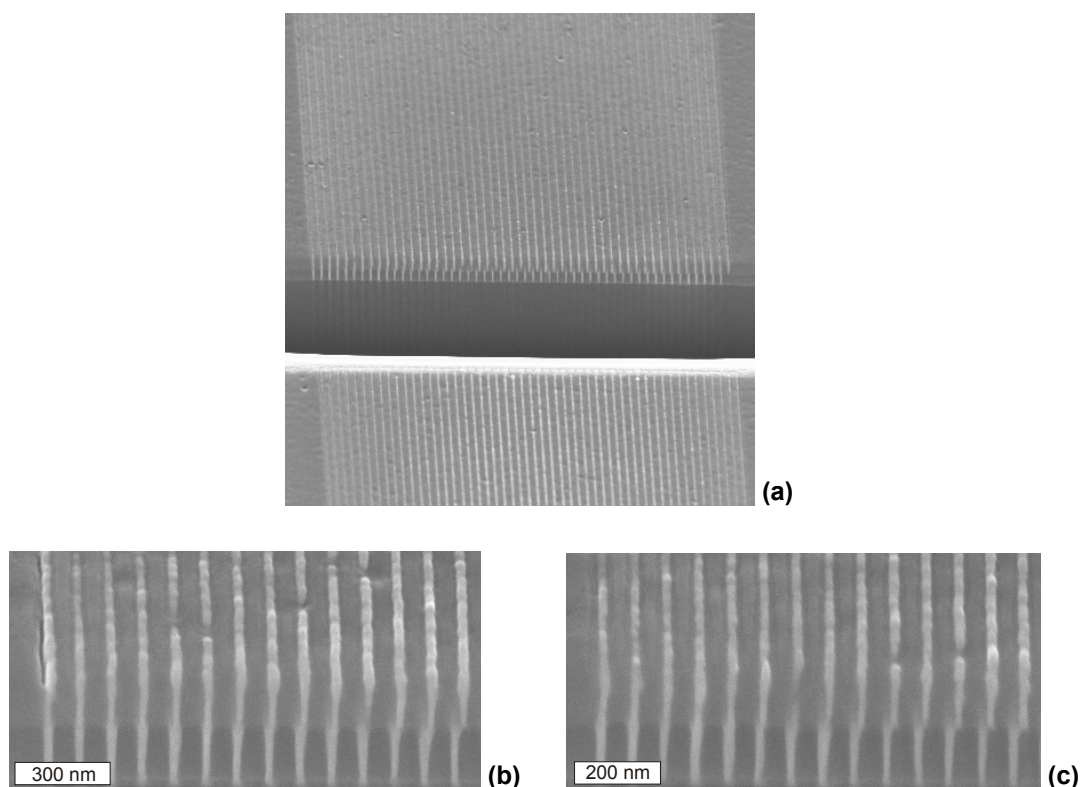


Abbildung 6.2: SEM-Aufnahmen der Querschnitte von übereinandergelagerten linearen Gitterstrukturen mit (a) 30 nm und (b) 25 nm Linienbreite (Aufnahme um  $45^\circ$  gekippt). Die Periode der oberen Gitterstrukturen wurde um 1 nm vergrößert, um eine exakte Überlagerung an einer Stelle des Gitters zu gewährleisten.

der Linienstrukturen von ca. 320 nm entspricht. Die zugehörigen Aspektverhältnisse

der Nickellinien errechnen sich zu 10.5 und 12.5 für Linienbreiten von 30 und 25 nm. Dieses Aspektverhältnis ist um 30% größer als das maximal erzielte Verhältnis bei der Herstellung von Mono-Layer-Strukturen mit strahlungsvernetztem Kunststoff (siehe Abschnitt 5.2.2) und sogar mehr als doppelt so groß wie die erreichbaren Aspektverhältnisse in unvernetztem ARC-XL20.

### 6.2 Hergestellte Multi-Lagen-Zonenplatten

Im Anschluß an die erfolgreiche Fertigung von übereinandergelagerten Lineargittern wurde der in Kapitel 5 beschriebene Prozeß zur Herstellung von Zonenplattenstrukturen bestehend aus zwei übereinandergelagerten Zonenplattenlagen angewandt. Dazu wurden Zonenplatten mit den folgenden Parametern prozessiert. Im Folgendem werden die hergestellten Multi-Lagen-Zonenplatten durch „OVZP-“ und die Einzel-Lagen-Zonenplatten durch „ZP-“ gekennzeichnet.

Bezeichnung	OVZP-40	OVZP-30	OVZP-25
Zonenzahl $N$	288	514	740
Durchmesser $d$ [ $\mu\text{m}$ ]	46.1	61.6	73.9
Brennweite $f$ ( $\lambda = 1.82$ nm)	1.0 mm		
äußere Zonenbreite $dr_n$ [nm]	40.1	30.0	25.0

Tabelle 6.1: Parameter der hergestellten Multi-Lagen-Zonenplattenstrukturen (OVZP).

Zunächst wurde die erste Schicht Nickel-Zonen zusammen mit geeigneten Marken für die Overlay-Belichtungen auf festen Si-Substraten in zuvor strukturierte ARC-XL20 Kunststoffformen galvanisiert. Die zwischen 190 und 200 nm hohen Galvanoformen wurden dabei mit 20 – 40 nm Nickel überfüllt. Nach der Planarisation dieser Zonenplatten mittels CMP wurde als Kontaktierung für die spätere galvanische Abscheidung der zweiten Nickel-Zonenstrukturen eine dünne, leitende Cr/Ge-Schicht auf die Proben aufgedampft. Anschließend wurde ein neues Schichtsystem bestehend aus Polymer-, Maskierungs- und Resistschicht aufgebracht. Die im zweiten EBL-Schritt zu belichtenden Zonenplattenstrukturen wurden mittels der zuvor prozessierten Schreibfeldmarken an den unterliegenden Strukturen ausgerichtet. Nach dem Entwickeln der Belichtungen wurden die Strukturen erneut durch reaktives Ionenätzen mit  $\text{BCl}_3$  bzw.  $\text{O}_2$  in die Maskierungs- und Polymerschicht übertragen. Abbildung 6.3 zeigt SEM-Aufnahmen nach der Struktur-Übertragung in die zweite Zonenplattenlage. In Abbildung 6.3 (a) werden unter der strukturierten ARC-XL20 Galvanoform deutlich die Kratzer in den zuvor polierten unterliegenden Nickel-Zonen ersichtlich. Im linken Bildbereich von Abbildung 6.3 (b) sind mit schwachen Kontrast die leicht versetzten Nickel-Zonen der ersten Zonenplattenlage unter den Polymerstrukturen der zweiten Zonenplattenschicht erkennbar.

Nachdem die Galvanoformen der zweiten Zonenlage ebenfalls mit Nickel gefüllt wurden, wurde in ausgewählten Zonenplatten mittels FIB ein Graben erzeugt, um



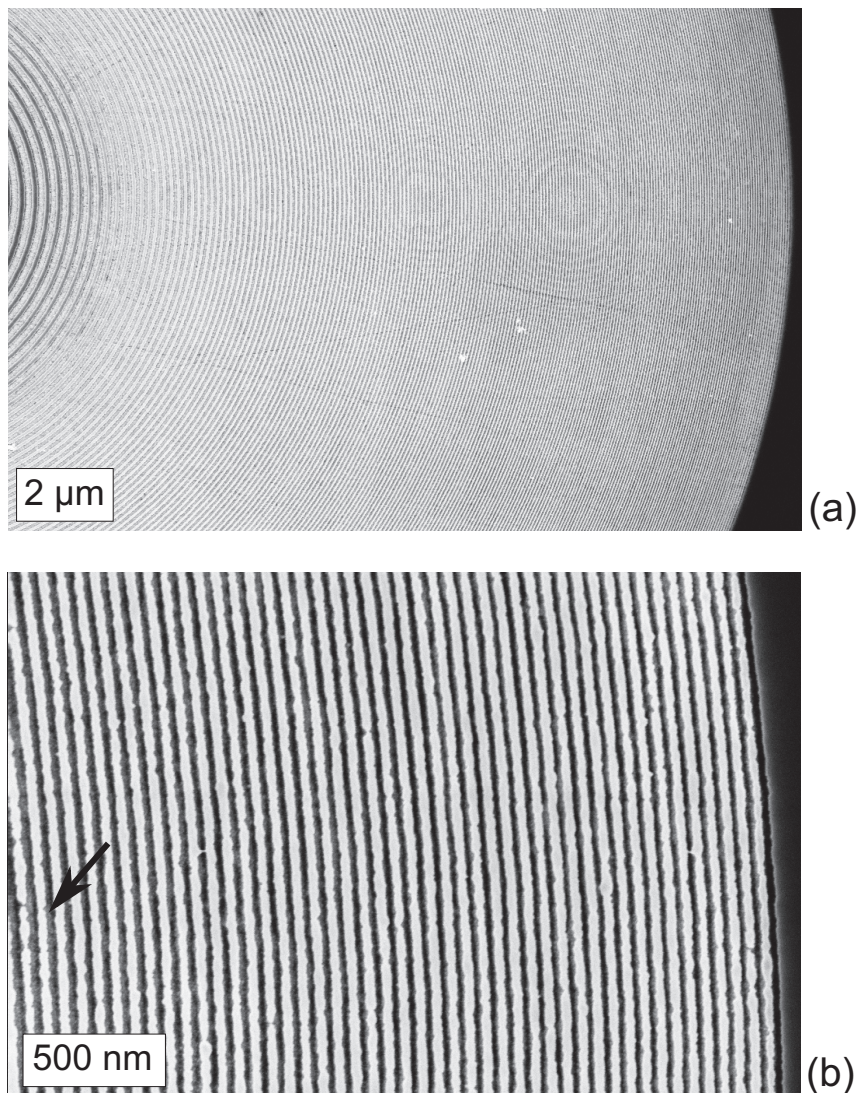


Abbildung 6.3: SEM-Aufnahmen der strukturierten Galvanoform der zweiten Zonenplattenschicht mit 40 nm äußerer Zonenbreite vor der Nickel-Galvanik. Dargestellt sind (a) ein Überblick über die Zonenplatte und (b) die äußeren Zonenstrukturen. In Abbildung (b) sind im linken Bildbereich die leicht versetzten Nickelzonen der ersten Zonenplattenlage gekennzeichnet.

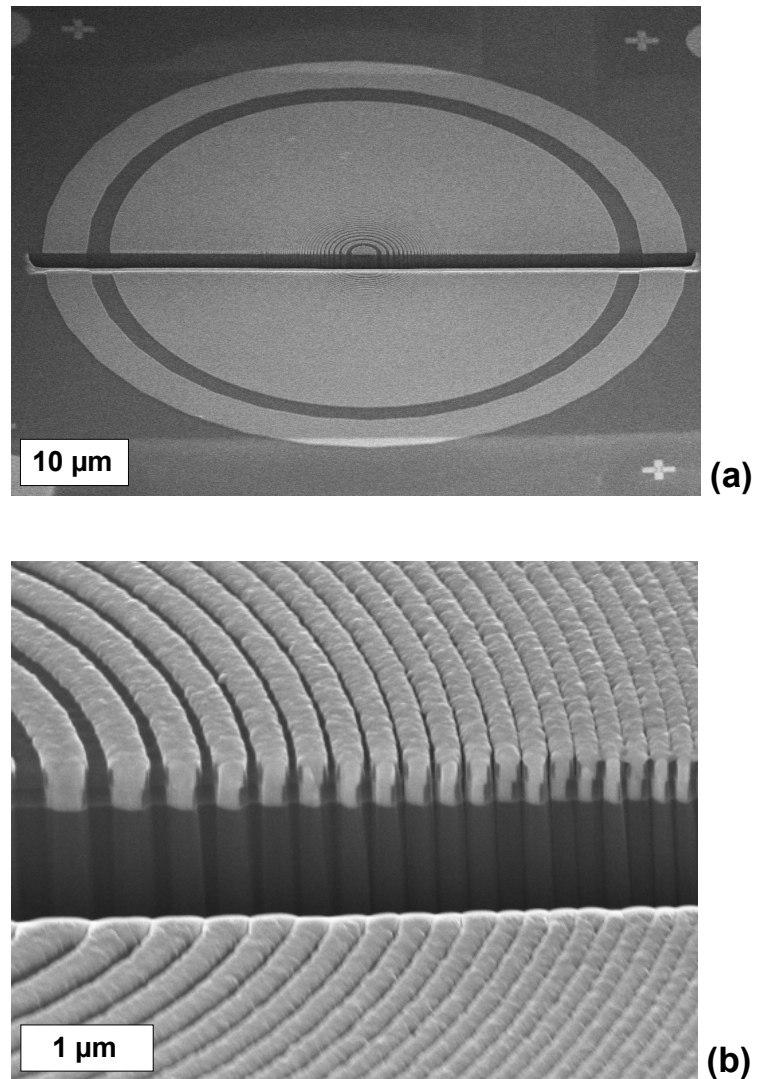


Abbildung 6.4: SEM-Aufnahmen einer aus zwei übereinandergelagerten Einzel-Zonenlagen bestehenden Multi-Lagen-Zonenplatte mit  $dr_n = 30$  nm. Gezeigt sind (a) ein Überblick über die Zonenplatte mit den Schreibfeldmarken und einem durch FIB erzeugten Graben, sowie (b) der Querschnitt der inneren Nickel-Zonen (Aufnahmen um  $45^\circ$  gekippt). Die zweite Zonenlage wurde noch nicht poliert.



## 6.2 Hergestellte Multi-Lagen-Zonenplatten

den Querschnitt der übereinandergelagerten Nickel-Zonen sichtbar zu machen [129]. In den SEM-Aufnahmen in Abbildung 6.4 sind Überblicksaufnahmen über eine zweilagige Nickel-Zonenplatte mit den Schreibfeldmarken und dem durch FIB erzeugten Graben dargestellt. Die Querschnitte der inneren und äußeren Zonenstrukturen sind

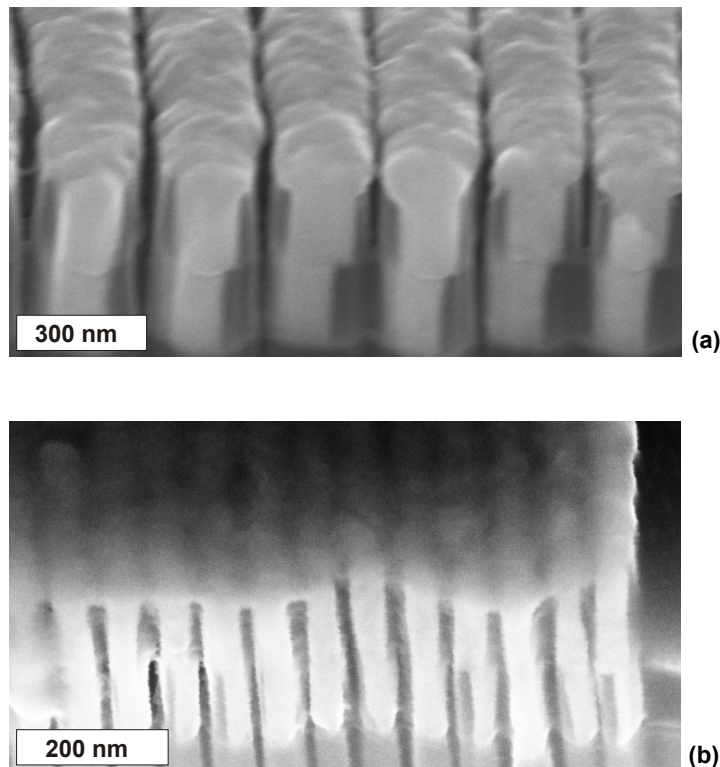


Abbildung 6.5: SEM-Aufnahmen einer Nickel-Multi-Lagen-Zonenplatte mit  $dr_n = 30$  nm. Dargestellt ist der Querschnitt der (a) inneren und (b) äußeren Nickel-Zonen (Aufnahmen um  $45^\circ$  gekippt). Die zweite Zonenplattenlage wurde noch nicht poliert.

in Abbildung 6.5 gezeigt. Die beiden übereinandergelagerten Zonenplattenlagen sind in beiden SEM-Aufnahmen deutlich ersichtlich. Die zweite Lage der Zonenstrukturen wurde noch nicht poliert. Die dargestellten Nickel-Zonen haben eine Gesamthöhe von ca. 320 nm. Der Querschnitt der inneren Zonen in Abbildung 6.5 (a) zeigt einen deutlichen Versatz zwischen der ersten und der zweiten Zonenplattenschicht von bis zu  $1/3$  der Zonenbreite. In der SEM-Aufnahme der äußeren Zonen ist eine leichte Verschiebung der unteren Zonen erkennbar. Da die Aufnahmen den Querschnitt der Zonen nur eindimensional in einer ausgewählten Richtung darstellen, lässt sich keine Aussage über den Overlay-Fehler bei der Herstellung treffen.

Im Anschluß an diese Experimente wurde ein weiterer Satz zweilagiger Zonenplat-

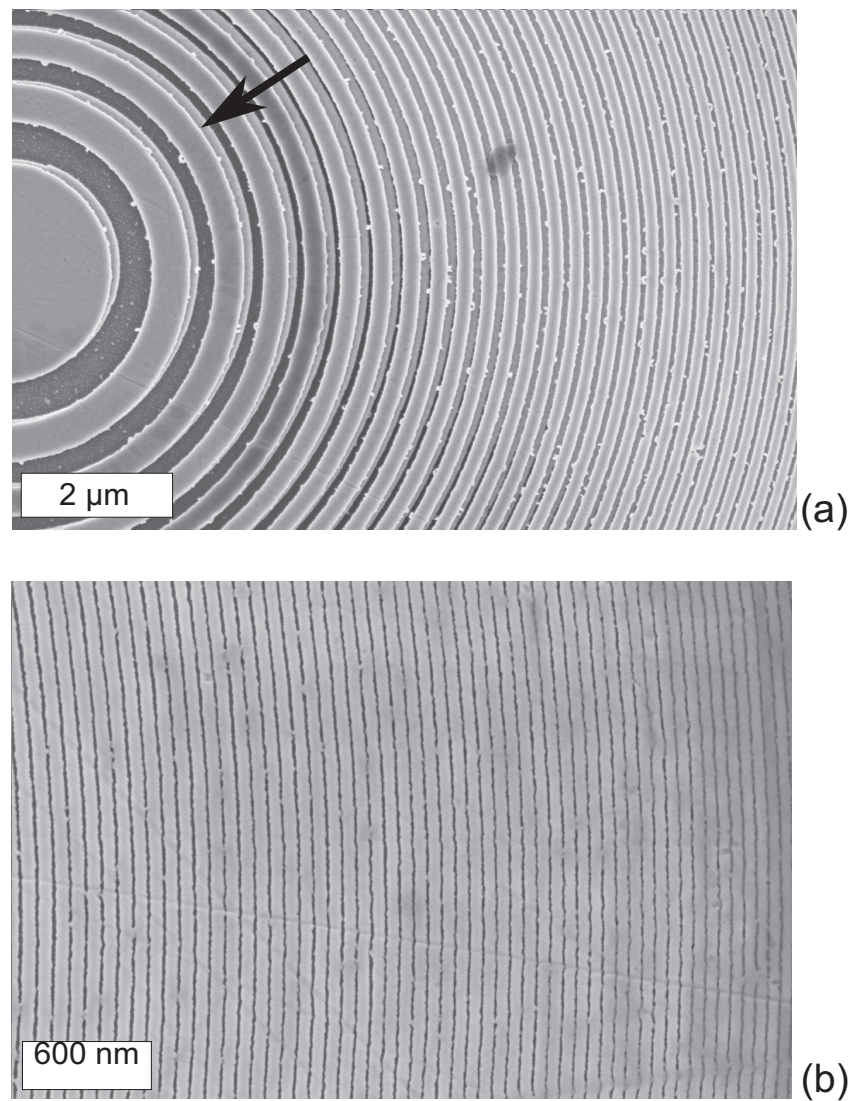


Abbildung 6.6: SEM-Aufnahmen der Multi-Lagen-Zonenstrukturen OVZP-40/2 bestehend aus zwei übereinandergelagerten Nickel-Zonenplatten mit 40 nm äußerer Zonenbreite. Dargestellt sind die (a) inneren und (b) äußeren Zonenstrukturen. Gekennzeichnet ist der deutlich erkennbare Versatz zwischen den Zonenplattenlagen.

ten mit den gleichen Parametern auf dünnbaren Si-Substraten prozessiert. Bei diesen Strukturen wurde in einem zweiten CMP-Schritt auch das übergalvanisierte Nickel der zweiten Zonenplattenlage und die oberste Ti-Maskierung entfernt. Anschließend wurde das Si-Substrat mit dem in Abschnitt 5.2.4 beschriebenen nass-chemischen Ätzprozeß gedünnt und somit die 100 nm dicke Siliziumnitrid-Folie als Trägermembran für die Multi-Lagen-Zonenplatten freigelegt. Im letzten Schritt wurde die Polymer-Galvanoform und die Cr/Ge-Zwischenschicht mit reaktiven Ionenätzen entfernt. SEM-Aufnahmen von auf diese Weise prozessierten Multi-Lagen-Zonenstrukturen bestehend aus zwei Nickel-Zonenplattenlagen mit äußeren Zonenbreiten von 40 und 30 nm sind in den Abbildungen 6.6 und 6.7 dargestellt. Die Einzel-Schichthöhen der Nickel-Zonenstrukturen beträgt 160 – 180 nm. Damit ergeben sich Gesamthöhen zwischen 320 und 360 nm und resultierend maximale Aspektverhältnisse der Nickel-Zonen bis zu 12 : 1 für  $dr_n = 30$  nm. Die inneren Zonen in Abbildung 6.6 (a) und 6.7 (a) lassen einen deutlichen Versatz zwischen den beiden Zonenplattenlagen erkennen. Zusätzlich werden in Abbildung 6.7 (a) Ungenauigkeiten der Zonenposition an einem Viertelansatz der Zonen ersichtlich. Diese Abweichungen wurden auch in weiteren SEM-Aufnahmen beobachtet und können auf Zerlegungsfehler des idealen Zonenplattenmusters bei der Elektronenstrahlolithographie zurückgeführt werden. Das übergalvanisierte Nickel der zweiten Zonenplattenlage wurde rückstandslos mittels CMP entfernt. Bei beiden Zonenplatten zeigen die äußeren Zonen durch das Planarisieren der zweiten Lage verursachte Kratzer geringer Tiefe in den Nickel-Strukturen. In den SEM-Aufnahmen der äußeren Zonen wird ersichtlich, daß das Strich-Lücke-Verhältnis der Zonenstrukturen vom Idealwert von 0.5 abweicht.

Da die SEM-Aufnahmen der Multi-Lagen-Zonenplatten im Wesentlichen Oberflächeninformationen liefern und somit nur begrenzte Aussagen über den Versatz zwischen den Zonenplattenlagen erlauben, wurden die Zonenstrukturen zusätzlich mit Hilfe von rastertransmissionselektronenmikroskopischen (engl. Scanning Transmission Electron Microscopy - STEM) Aufnahmen untersucht. Die Bilder wurden mit Hilfe des seit Februar 2010 betriebsbereiten EBPG5000plusES Elektronenstrahlolithographiesystems (*Vistec Electron Beam Lithography Group*) bei einer Elektronenenergie von 100 keV und einem Strom von ca. 4.5 nA angefertigt. In den Abbildungen 6.8 bis 6.10 sind STEM-Aufnahmen innerer und äußerer Strukturen der Multi-Lagen-Zonenplatten OVZP-40/1, OVZP-40/2 und OVZP-30/2 dargestellt. Im Vergleich zu den SEM-Aufnahmen ergibt sich aufgrund der Transmissionsabbildung eine Kontrastumkehr der Zonenplattenstrukturen. Die absorbierenden Nickelzonenstrukturen erscheinen dabei dunkel, während die Zwischenräume resultierend aus einer nahezu ungehinderten Transmission der Elektronen hell dargestellt werden. Die durch einen möglichen Versatz zwischen den Zonenlagen entstandenen unterschiedlichen Nickelstrukturhöhen und die dadurch verursachten abweichenden Absorptionskoeffizienten ergeben in den STEM-Aufnahmen Grauabstufungen. Durch die STEM-Untersuchungen werden die Ergebnisse der SEM-Aufnahmen der übereinandergelagerten Zonenplattenstrukturen widergespiegelt. Besonders die inneren Zonen der Multi-Lagen-Zonenplatten OVZP-40/2 und OVZP-30/2 zeigen einen deutlichen Versatz zwischen der ersten und zweiten Nickelzonenlage. Auch die Fehlpositionierung der einzelnen Zonenplattenviertel und

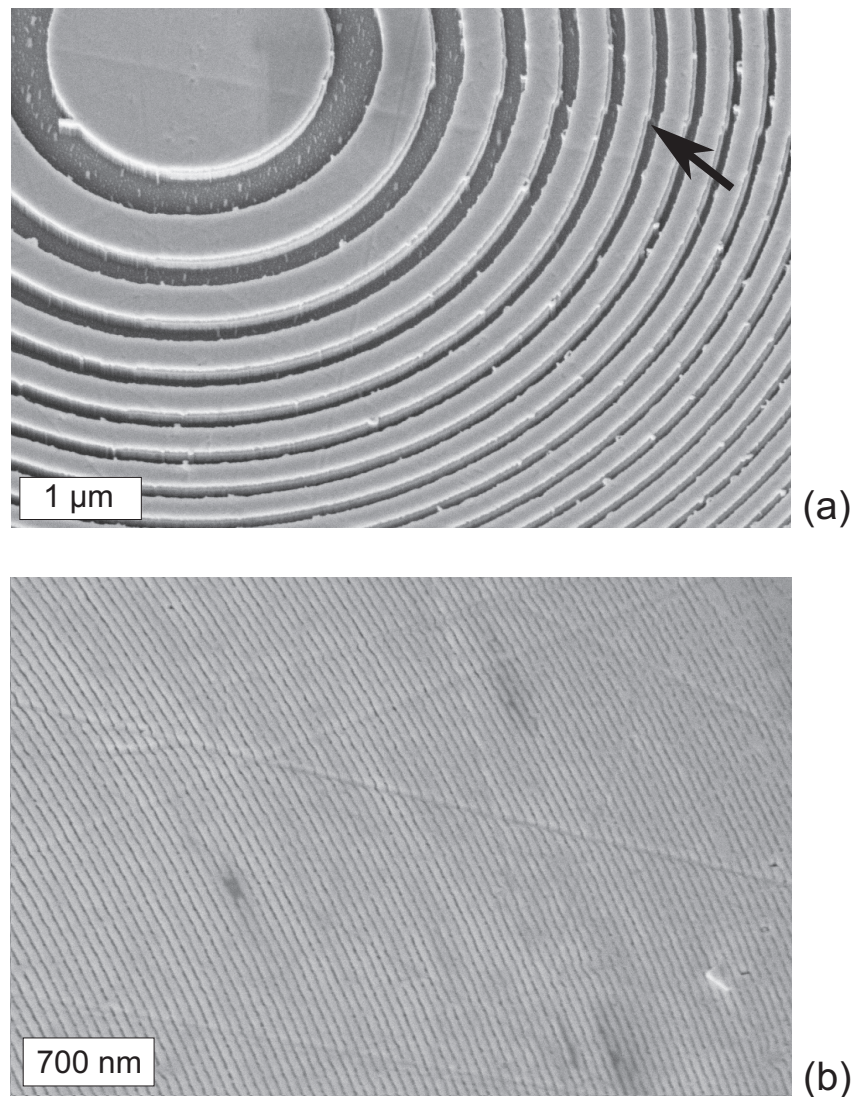


Abbildung 6.7: SEM-Aufnahmen der Multi-Lagen-Zonenstrukturen OVZP-30/2 bestehend aus zwei übereinandergelagerten Nickel-Zonenplatten mit 30 nm äußerer Zonenbreite. Dargestellt sind die (a) inneren und (b) äußeren Zonenstrukturen. Die Aufnahmen sind um 30° gekippt. Gekennzeichnet sind die Positionierungsfehler an den Viertelansätzen der Zonenstrukturen.



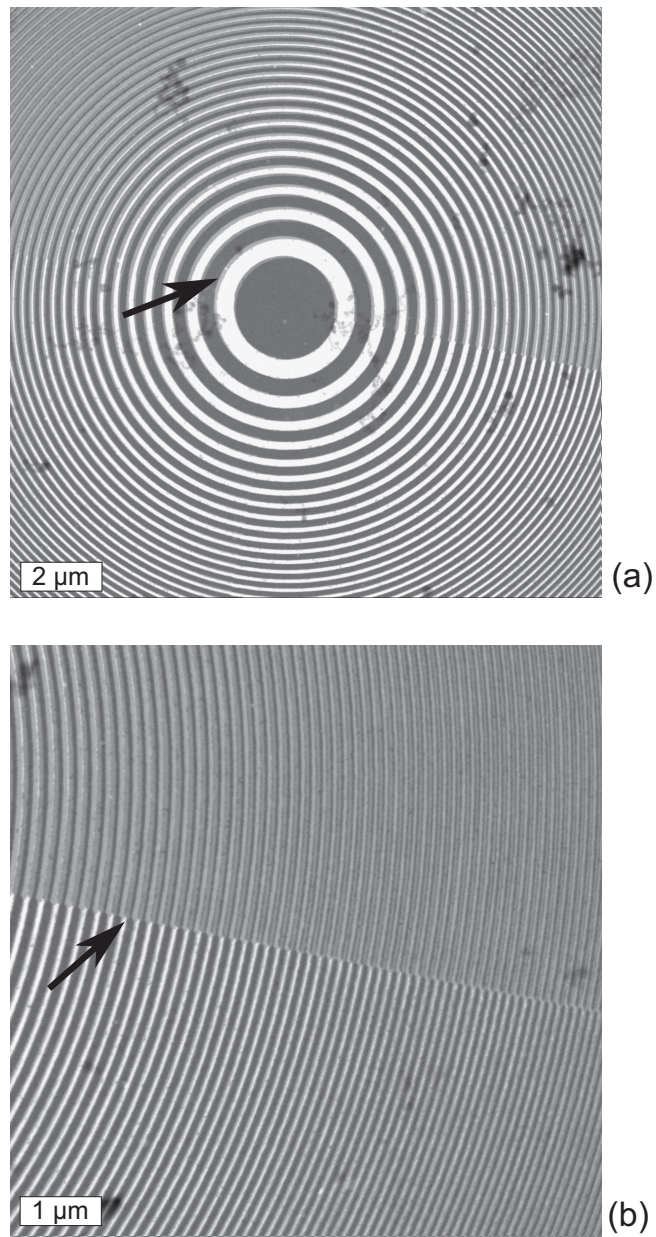


Abbildung 6.8: STEM-Aufnahmen der innere Zonen der Multi-Lagen-Zonenstrukturen OVZP-40/2 bestehend aus zwei übereinandergelagerten Nickel-Zonenplatten mit 40 nm minimaler Strukturbreite. Gekennzeichnet ist der Versatz zwischen Zonenplattenlagen und die Positionierungsfehler an den Viertelansätzen der Zonenstrukturen.

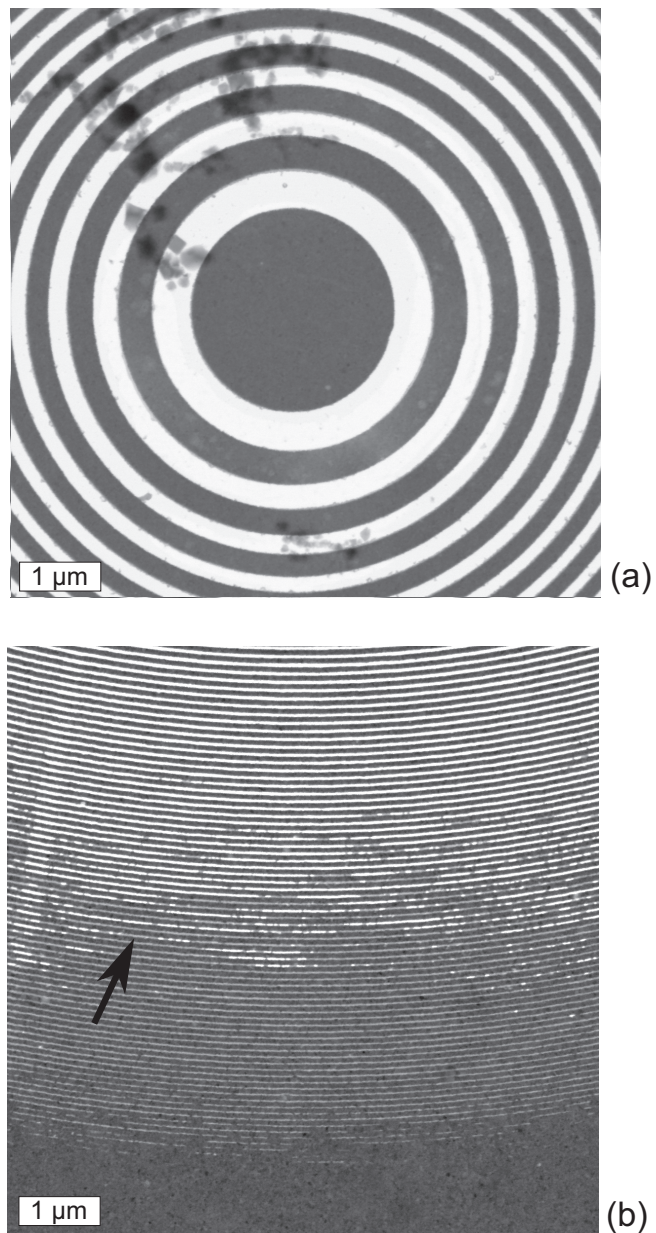


Abbildung 6.9: STEM-Aufnahmen der Multi-Lagen-Zonenstrukturen OVZP-40/1 nach Übereinanderlagern zweier Nickel-Zonenplatten mit 40 nm äußerer Zonenbreite. Dargestellt sind die (a) inneren und (b) äußeren Zonenstrukturen. Gekennzeichnet sind Fehlstellen in den äußeren Zonen die auf Polymerrückstände beim Freiätzen der Strukturen zurückgeführt werden können.

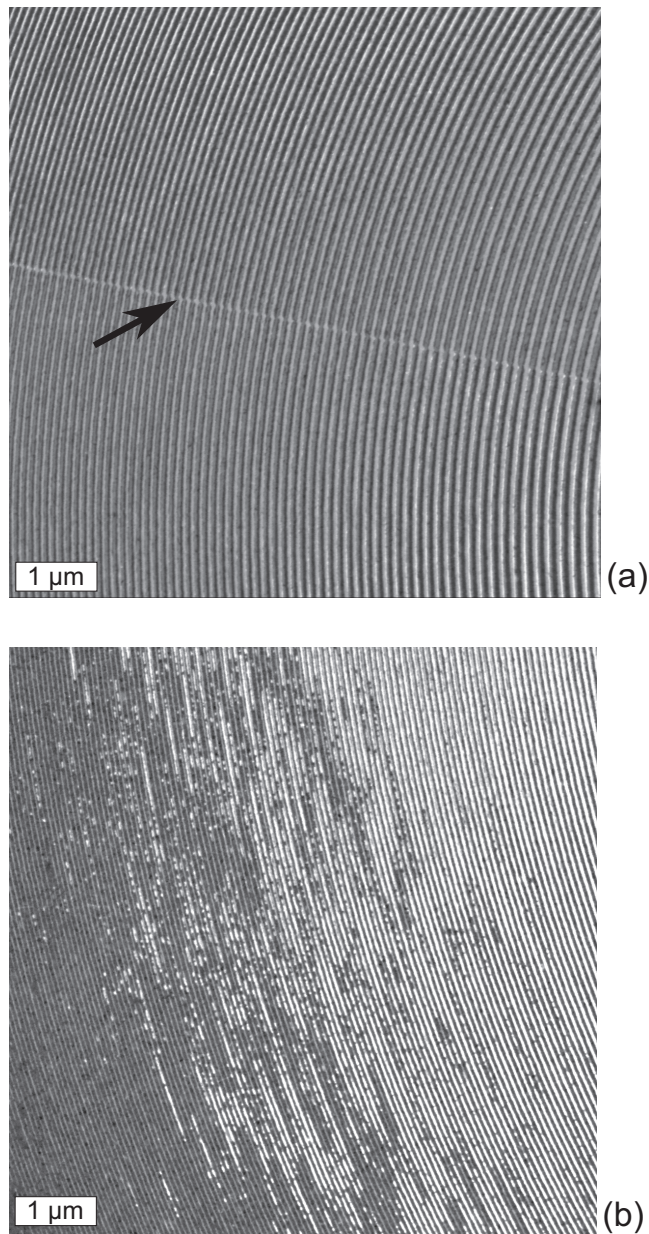


Abbildung 6.10: STEM-Aufnahmen der Multi-Lagen-Zonenstrukturen OVZP-30/2 bestehend aus zwei übereinandergelagerten Nickel-Zonenplatten mit 30 nm  $dr_n$ . Die Aufnahmen zeigen die (a) inneren und (b) äußeren Zonenstrukturen. Gekennzeichnet sind Positionierungsfehler an den Viertelansätzen der Zonenstrukturen.

die daraus abweichenden Versatzwerte innerhalb dieser Gebiete werden in den STEM-Abbildungen ersichtlich. Im Gegensatz dazu lassen die inneren Zonen der Zonenplatte OVZP-40/1 keinen signifikanten Versatz erkennen. Des weiteren zeigen die STEM-Aufnahmen der äußeren Zonen der Multi-Lagen-Zonenplatten OVZP-40/1 und OVZP-30/2 in den Abbildungen 6.9 (b) und 6.10 (b) ebenso wie die SEM-Bilder, daß das Strich-Lücke-Verhältnis der Nickelzonen stark von 0.5 abweicht. Im Vergleich zu den SEM-Abbildungen der Multi-Lagen-Strukturen wird jedoch aus den STEM-Aufnahmen ein weiterer Effekt nach der Strukturierung der äußeren Zonen deutlich, der sich durch Transmissionsunterschiede innerhalb der Zwischenräume der äußersten Zonen auszeichnet. Diese Störstellen können durch mögliche Rückstände der Polymergalvanoform nach dem Freiätzen der Nickelstrukturen mittels RIE erklärt werden, da die Nickellinienbreiten aufgrund des gesteigerten Strich-Lücke-Verhältnisses vom Idealwert abweichen und die Abstände zwischen den Zonen somit deutlich geringer als die äußere Zonenbreite sind.

Um den Einfluß der aus den SEM- und STEM-Aufnahmen ermittelten Herstellungsfehler innerhalb der Multi-Lagen-Zonenplatten auf die röntgenoptischen Eigenschaften dieser Optiken zu ermitteln, wurden Experimente zur Untersuchung des Beugungswirkungsgrades durchgeführt. In den folgenden Abschnitten werden der dazu verwendete Versuchsaufbau, sowie die Durchführung und die Ergebnisse dieser Messungen beschrieben.

### 6.3 Wirkungsgradmessungen von übereinandergelagerten Zonenplatten

Der Effekt von Fertigungsfehlern bei der Strukturierung der zuvor beschriebenen Multi-Lagen-Zonenplatten sollte experimentell untersucht werden. Dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit der Beugungswirkungsgrad der ersten Beugungsordnung der hergestellten Optiken gemessen und mit theoretischen Werten, sowie den experimentell ermittelten Effizienzen von Einzel-Lagen-Zonenplatten verglichen. Im Rahmen der Experimente wurden die integrale Beugungseffizienz über die gesamte Zonenplattenfläche und lokale Wirkungsgrade in Abhängigkeit vom Zonenplattenradius und für lokale Zonenplattenbereiche bestimmt. Im folgendem Abschnitt wird zunächst der dazu verwendete Messaufbau beschrieben. Anschließend werden die Auswertung der Messungen und die Ergebnisse dargestellt.

#### 6.3.1 Messaufbau zur Bestimmung der Beugungseffizienz

Die Messungen zum Beugungswirkungsgrad von Zonenplattenoptiken wurden am elliptischen Undulator UE46 am Elektronenspeicherring BESSY II des Helmholtz-Zentrums Berlin bei Photonenergien von 520 – 800 eV durchgeführt. Die Strahlung der Undulatorquelle wird dabei durch einen Plan-Gitter-Monochromator (engl. Plain Grating Monochromator – PGM) mit einer Energieauflösung von  $E/\Delta E = 2000$  monochromatisiert [33]. Um eine homogene Ausleuchtung der zu untersuchenden Zonenplatte zu



### 6.3 Wirkungsgradmessungen von übereinandergelagerten Zonenplatten

erzielen, wurde diese exakt im Zentrum des Röntgenstrahls justiert. Zur Minimierung der Auswirkungen von Röntgenstrahlung der nullten und höherer Beugungsordnungen wurde eine Lochblende mit einem Durchmesser von  $5\text{ }\mu\text{m}$  in den Fokuspunkt der Zonenplatte gebracht. Dies ermöglichte die Aufnahme der in die erste Beugungsordnung gebeugten Röntgenintensität im Fernfeld der Zonenplattenoptik mit einem orts aufgelösten Detektor. Die dazu verwendete CCD-Kamera besteht aus einem gedünnten CCD-Chip mit  $512 \times 512$  Pixeln mit einer Pixelgröße von  $27 \times 27\text{ }\mu\text{m}$ . Abbildung 6.11 zeigt schematisch den verwendeten Messaufbau und den Strahlengang.

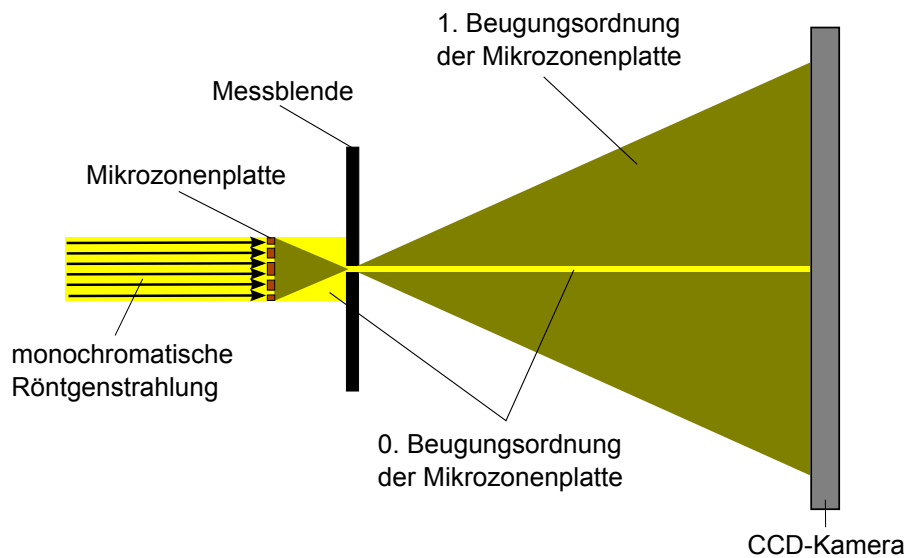


Abbildung 6.11: Schematische Darstellung des Messaufbaus und des Strahlenganges zur Messung der Intensität der 1. Beugungsordnung einer Zonenplatte.

Den Bereichen der so erhaltenen Intensitätsverteilung können geometrisch beugende Bereiche der Zonenstrukturen zugeordnet werden. Somit lässt sich die Beugungseffizienz sowohl integral über die gesamte Zonenplattenfläche als auch lokal für ausgesuchte Bereiche der Zonenstrukturen oder als Funktion des Zonenplattenradius berechnen. Zusätzlich zur in die erste Beugungsordnung gebeugten Intensität wird für die Bestimmung des Beugungswirkungsgrades die gesamte auf die Optik einfallende Intensität benötigt. Hierfür wird anstelle der vorhergehenden Blende eine Lochblende mit einem Durchmesser von  $50\text{ }\mu\text{m}$  einjustiert. Danach wird die Zonenplatte aus dem Strahlengang genommen und die einfallende Intensität mit Hilfe der CCD-Kamera gemessen. Die auf die Zonenplatte einfallende Gesamtintensität ergibt sich durch Wichtung der Blendenfläche mit der tatsächlichen Zonenplattenfläche.

### 6.3.2 Auswertung und Messergebnisse

Zunächst wurde der integrale absolute Beugungswirkungsgrad  $\eta_{abs}$  von hergestellten Einzel- und Multi-Lagen-Zonenplatten bei verschiedenen Photonenenergien bestimmt. Als Einzel-Lagen-Zonenplatten wurden polierte Nickelzonenplatten mit Zonenhöhen von ca. 180 nm und äußeren Strukturbreiten von 30 und 40 nm untersucht. Dazu wurden die Intensitätsverteilungen der ersten Beugungsordnung der Zonenplattenstrukturen mit dem zuvor beschriebenen Messaufbau aufgenommen. Die maximale Belich-

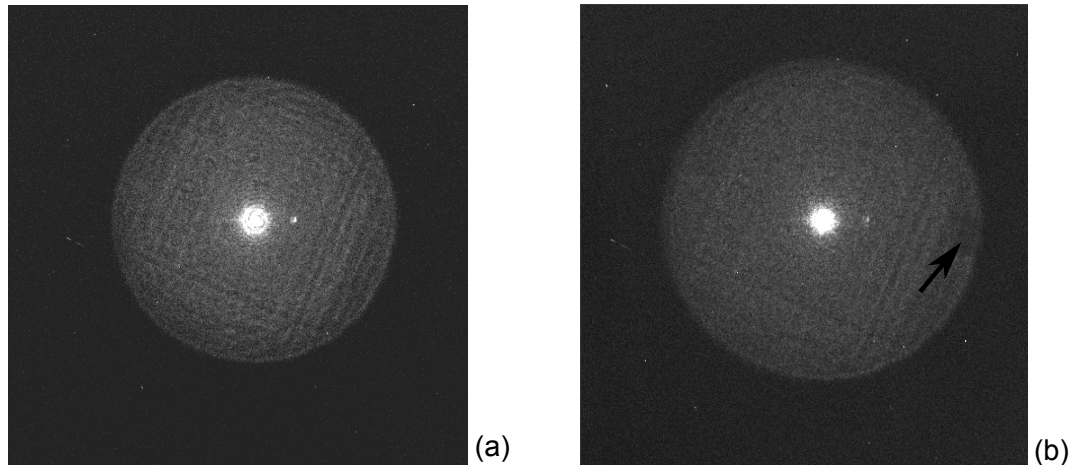


Abbildung 6.12: Intensitätsverteilung der ersten Beugungsordnung der Einzel-Lagen-Zonenplatten (a) ZP-40/4 und (b) ZP-30/1 mit minimalen Zonenbreiten von 40 bzw. 30 nm bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 1.82$  nm. In Abbildung (b) sind am rechten Rand der Zonenplatte (Pfeil) Fehler in den äußeren Zonenplattenstrukturen erkennbar.

tungszeit ist dabei durch die sehr hohe Photonenzahl der nullten Ordnung begrenzt. Erste Versuche haben gezeigt, daß bei einer optimalen Belichtungszeit von 60 s ein Übersteuern der CCD-Kamera vermieden wird. Die geringe Intensität der in die erste Beugungsordnung gebeugten Röntgenstrahlung wird in der Detektorebene auf eine große Fläche verteilt, wodurch das Signal-Rausch-Verhältnis der Aufnahmen sinkt. Um das Rauschen zu reduzieren wurden für die Auswertung 5 – 20 Einzelaufnahmen addiert. Die auf die Optik einfallende Intensität wurde bei Belichtungszeiten von 350 – 500  $\mu$ s gemessen. Abbildung 6.12 zeigt die Intensitätsverteilung der ersten Beugungsordnung von Einzel-Lagen-Zonenplatten mit  $dr_n = 40$  und 30 nm bei einer Photonenenergie von 680 eV. Die erhöhte Intensität im inneren Bereich der Zonenplatten wird durch die Strahlung der nullten Beugungsordnung verursacht. Um eine Verfälschung der Wirkungsgradmessungen zu verhindern, wurde der Anteil der nullten Beugungsordnung in den Intensitätsverteilungen bei der Berechnung der Effizienzen erster Ordnung berücksichtigt.

### 6.3 Wirkungsgradmessungen von übereinandergelagerten Zonenplatten

Der integrale absolute Beugungswirkungsgrad einer Zonenplatte ergibt sich nach Gleichung 2.27 aus dem Verhältnis der in die erste Beugungsordnung gebeugten Intensität  $I_1$  zur Gesamtintensität der auf die Zonenplatte einfallenden Strahlung  $I_0$ . Aus den Aufnahmen der ersten Ordnung wird mittels einer geeigneten Bildbearbeitungssoftware (*ImageJ*) der Mittelwert  $\bar{I}_1(A)$  pro Pixel für die in die Fläche  $A$  gebeugte Intensität bestimmt. Durch Multiplikation dieses Wertes mit der in  $A$  enthaltenen Pixelzahl  $P(A)$  und nach Normierung auf die Pixelgröße der CCD-Kamera, die Belichtungszeit  $t_1$  und den Ringstrom  $I_{RS,1}$  ergibt sich  $I_1(A)$  zu:

$$I_1(A) = \bar{I}_1(A) \cdot \frac{P(A)}{(27 \mu\text{m})^2 \cdot t_1 \cdot I_{RS,1}}. \quad (6.1)$$

Unter der gut erfüllten Voraussetzung, daß die Zonenplatte homogen beleuchtet wird, lässt sich die auf die Zonenplattenfläche einfallende Intensität  $I_0$  analog zu Gleichung 6.1 aus der Aufnahme mit der 50  $\mu\text{m}$ -Lochblende ermitteln. Eine Abweichung zwischen der Zonenplatten- und der Blendenfläche wird dabei durch den Flächenfaktor  $\kappa = A_{ZP} / A_{Blende}$  berücksichtigt. Skalieren von  $I_0$  auf die Blendenfläche und Normieren auf die Belichtungszeit  $t_0$  und den Ringstrom  $I_{RS,0}$  liefert die absolute Effizienz einer Zonenplatte der Fläche  $A$ :

$$\eta_{abs}(A) = \frac{I_1(A)}{I_0(A)} = \frac{\bar{I}_1(A)}{\bar{I}_0} \cdot \kappa \cdot \frac{P(A) \cdot \pi \cdot (25 \mu\text{m})^2}{(27 \mu\text{m})^2} \cdot \frac{t_0 \cdot I_{RS,0}}{t_1 \cdot I_{RS,1}}. \quad (6.2)$$

Division des absoluten Beugungswirkungsgrades durch den Transmissionskoeffizient des Substrates liefert den Wirkungsgrad  $\eta_{groove}$  der Zonenplatte, den die beugenden Strukturen ohne Substrat erzielen würden. Da dieser Wert die reinen Beugungseigenschaften der Zonenstrukturen widerspiegelt, ist er für den Vergleich mit den theoretisch bestimmten Effizienzwerten notwendig. Tabelle 6.2 zeigt die experimentell ermittelten Werte von  $\eta_{abs}$  und  $\eta_{groove}$  bei 680 eV Photonenenergie, sowie die wichtigsten Parameter hergestellter Einzel- und Doppel-Lagen-Zonenplatten. Der relative Fehler der Einzelmessungen liegt bei ca. 10% [10, 61] und ergibt sich unter anderem aus Inhomogenitäten in der Ausleuchtung der Zonenplatte, Ungenauigkeiten bei der Justierung der Blende im Brennpunkt der Optik und Abweichungen im Flächenfaktor.

Für Einzel-Lagen-Nickelzonenplatten mit äußeren Zonenbreiten von 40 nm wurde ein maximaler Beugungswirkungsgrad  $\eta_{groove}$  von 11.0% (ZP-40/3) bei einer Photonenenergie von 680 eV ermittelt. Dies entspricht ca. 80% der maximal erreichbaren Effizienz von 13.8% bei der gegebenen Energie und einer Nickelzonenhöhe von 180 nm. Nur bei einer weiteren Einzel-Lagen-Zonenplatte mit 40 nm  $dr_n$  konnte eine Beugungseffizienz über 10% (ZP-40/4) nachgewiesen werden. Für die verbleibenden einlagigen Optiken mit Zonenbreiten von 30 und 40 nm ergeben sich geringe Wirkungsgrade im Bereich zwischen 2.4 – 4.9%. Die Differenzen zwischen den theoretischen und den gemessenen Werten können auf Fehler in den äußeren Zonen, Abweichungen vom idealen Strich-Lücke-Verhältnis und das nach außen abnehmende Höhenprofil der Zonenplattenstrukturen (siehe Abschnitt 5.2.1) zurückgeführt werden. Die maximale, gemessene

<b>Zonenplatte</b>	<b>ZP-40/1</b>	<b>ZP-40/2</b>	<b>ZP-40/3</b>
Radius $r_N$ [ $\mu\text{m}$ ]	31.3	31.3	31.3
Zonenzahl $N$	392	392	392
äußere Zonenbreite $dr_N$ [nm]	39.9	39.9	39.9
$\eta_{\text{absolut}}$ [%]	3.6	2.3	7.9
$\eta_{\text{groove}}$ [%]	4.9	3.2	10.7
<b>Zonenplatte</b>	<b>ZP-40/4</b>	<b>ZP-30/1</b>	<b>ZP-30/2</b>
Radius $r_N$ [ $\mu\text{m}$ ]	31.3	27.0	27.0
Zonenzahl $N$	392	450	450
äußere Zonenbreite $dr_N$ [nm]	39.9	29.9	29.9
$\eta_{\text{absolut}}$ [%]	8.1	2.6	1.8
$\eta_{\text{groove}}$ [%]	11.0	3.6	2.4
<b>Doppel-Lagen-Zonenplatte</b>	<b>OVZP-40/1</b>	<b>OVZP-40/2</b>	<b>OVZP-30/1</b>
Radius $r_N$ [ $\mu\text{m}$ ]	22.9	22.9	30.6
Zonenzahl $N$	288	288	514
äußere Zonenbreite $dr_N$ [nm]	39.8	39.8	29.8
$\eta_{\text{absolut}}$ [%]	15.2	11.6	8.6
$\eta_{\text{groove}}$ [%]	20.7	15.8	11.7
<b>Doppel-Lagen-Zonenplatte</b>	<b>OVZP-30/2</b>	<b>OVZP-30/3</b>	<b>OVZP-25/1</b>
Radius $r_N$ [ $\mu\text{m}$ ]	30.6	30.6	36.7
Zonenzahl $N$	514	514	740
äußere Zonenbreite $dr_N$ [nm]	29.8	29.8	24.8
$\eta_{\text{absolut}}$ [%]	9.3	5.4	5.7
$\eta_{\text{groove}}$ [%]	12.7	7.4	7.8

Tabelle 6.2: Parameter und experimentell ermittelte Beugungseffizienzen der ersten Beugungsordnung von hergestellten Einzel- und Doppel-Lagen-Zonenplatten bei  $E_{\text{photon}} = 680$  eV.

### 6.3 Wirkungsgradmessungen von übereinandergelagerten Zonenplatten

sene integrale Beugungseffizienz einer Doppel-Lagen-Zonenplatte ergibt sich bei einer minimalen Zonenbreite von 40 nm zu  $\eta_{groove} = 20.7\%$  (OVZP-40/1) bei  $E_{photon} = 680$  eV. Ausgehend von einer Gesamthöhe dieser Nickelzonen von 320 nm entspricht dies 82.5% des maximal erreichbaren Wirkungsgrades von 25.1% bei 680 eV. Die Abwei-

Zonenplatte	Energie [eV]	$\eta_{absolut}$ [%]	$\eta_{groove}$ [%]	$\eta_{theoretisch}$ [%]
ZP-40/3	520	10.7	<b>16.4</b>	<b>21.0</b>
ZP-40/4	520	11.1	<b>17.0</b>	<b>21.0</b>
ZP-40/3	680	7.9	<b>10.7</b>	<b>13.8</b>
ZP-40/4	680	8.1	<b>11.0</b>	<b>13.8</b>
ZP-40/3	800	3.7	<b>4.7</b>	<b>6.5</b>
ZP-40/4	800	4.0	<b>5.1</b>	<b>6.5</b>
OVZP-40/1	680	15.2	<b>20.7</b>	<b>25.1</b>
OVZP-30/2	680	9.3	<b>12.7</b>	<b>24.8</b>
OVZP-25/1	680	5.7	<b>7.8</b>	<b>24.6</b>
OVZP-40/1	800	9.9	<b>12.6</b>	<b>15.8</b>
OVZP-30/2	800	6.6	<b>8.4</b>	<b>15.7</b>
OVZP-25/1	800	4.0	<b>5.1</b>	<b>15.4</b>

Tabelle 6.3: Vergleich theoretischer und experimentell ermittelter Beugungseffizienzen der ersten Beugungsordnung von hergestellten Einzel- und Doppel-Lagen-Zonenplatten bei Photonenenergien von 520, 680 und 800 eV.

chung vom theoretisch erzielbaren Wert wird zusätzlich durch den Versatz zwischen den beiden Zonenplattenlagen und dem schlechten Strich-Lücke-Verhältnis der äußeren Zonen verursacht (siehe SEM- und TEM-Aufnahmen in den Abbildungen 6.6 und 6.9). Dennoch wurde bei der gewählten Röntgenenergie die Beugungseffizienz der ersten Beugungsordnung von Zonenplatten mit  $dr_n = 40$  nm gegenüber den Einzel-Lagen-Zonenplatten um das 1.8-fache gesteigert. Für Doppel-Lagen-Zonenplatten mit 30 nm äußerer Zonenbreite (OVZP-30/1 – OVZP-30/3) wurden Beugungseffizienzen im Bereich von 7.4 – 12.7% ermittelt, was eine Erhöhung der Effizienz um ca. einen Faktor 3 im Vergleich zu den einlagigen Röntgenoptiken darstellt. Der gemessene, integrale Wirkungsgrad einer Doppel-Lagen-Zonenplatte mit 25 nm  $dr_n$  beträgt 7.8% (OVZP-25/1). Aus Tabelle 6.2 wird ersichtlich, daß die erzielten integralen Beugungseffizienzen der Multi-Lagen-Optiken mit sinkenden äußeren Strukturbreiten abnehmen. Da die äußeren Zonen durch den großen Flächenanteil einen signifikanten Beitrag zum integralen Beugungswirkungsgrad liefern, kann dies durch zunehmende Fehler in den äußeren Strukturen der Zonenplatten bei sinkenden Strukturbreiten begründet werden. Um die Ergebnisse der Wirkungsgradmessungen zu bestätigen und die Erhöhung der Effizienz durch die Doppel-Lagen-Zonenplatten stärker zu verdeutlichen, wurden für ausgewählte Optiken Messungen bei weiteren Photonenenergien durchgeführt. Die

Ergebnisse werden in Tabelle 6.3 mit den maximalen, theoretischen Werten bei diesen Energien verglichen.

Die ermittelten Beugungseffizienzen bei 520 und 800 eV Photonenenergie bestätigen die Ergebnisse der vorhergehenden Messungen. Für die Einzel-Lagen-Zonenplatten ZP-40/3 und ZP-40/4 ergeben sich bei 520 eV Wirkungsgrade  $\eta_{groove}$  von 16.4% und 17.0%. Dies entspricht 78% bzw. 81% des maximalen theoretischen Effizienzwertes von 21.0% bei dieser Photonenenergie. Bei  $E_{photon} = 800$  eV wurden für diese Zonenstrukturen mit 40 nm äußeren Zonenbreiten Effizienzen von 4.7% und 5.1% gemessen. Im Vergleich dazu liefert die Doppel-Lagen-Zonenplatte OVZP-40/1 bei der gleichen Röntgenenergie einen integralen Beugungswirkungsgrad von 12.6%. Die korrespondierende maximale theoretische Effizienz liegt für Nickelzonen mit  $dr_n = 40$  nm und einer Höhe von 320 nm bei 15.8%. Gegenüber den Einzel-Lagen-Zonenplatten mit äußeren Strukturbreiten von 40 nm wurde die Beugungseffizienz in der ersten Beugungsordnung bei 800 eV somit mehr als verdoppelt. Für Doppel-Lagen-Zonenstrukturen mit 30 und 25 nm minimaler Zonenbreite wurden integrale Wirkungsgrade in Höhe von 8.4% bzw. 5.1% bei 800 eV Photonenenergie erzielt.

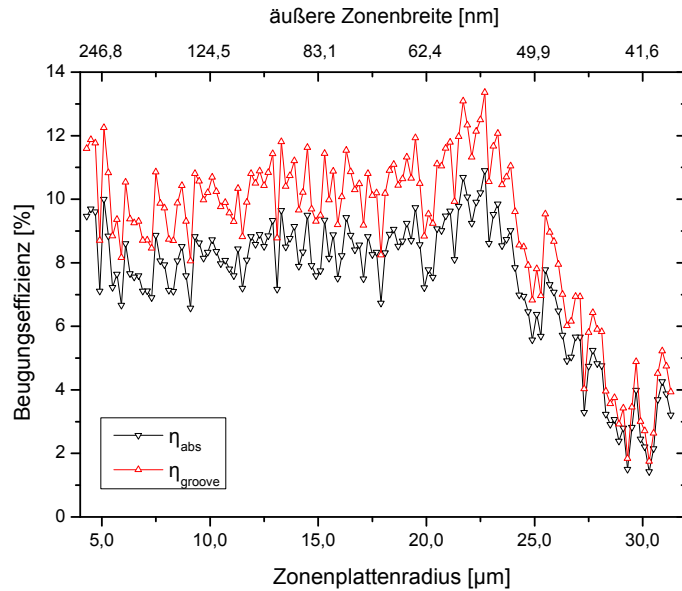


Abbildung 6.13: Beugungseffizienz der Einzel-Lagen-Zonenplatte ZP-40/3 abhängig vom Zonenplattenradius ( $E_{photon} = 680$  eV). Der integrale Wirkungsgrad  $\eta_{groove}$  beträgt 10.7%.

Um die Beugungseigenschaften der einzelnen Zonenplatten genauer zu untersuchen wurde der Wirkungsgrad orts aufgelöst, in Abhängigkeit vom Zonenplattenradius und somit von der Zonenbreite ermittelt. Analog zu den vorhergehenden Rechnungen wird der lokale Beugungswirkungsgrad mit Hilfe von Gleichung 6.2 für Zonenplattenaus-

### 6.3 Wirkungsgradmessungen von übereinandergelagerten Zonenplatten

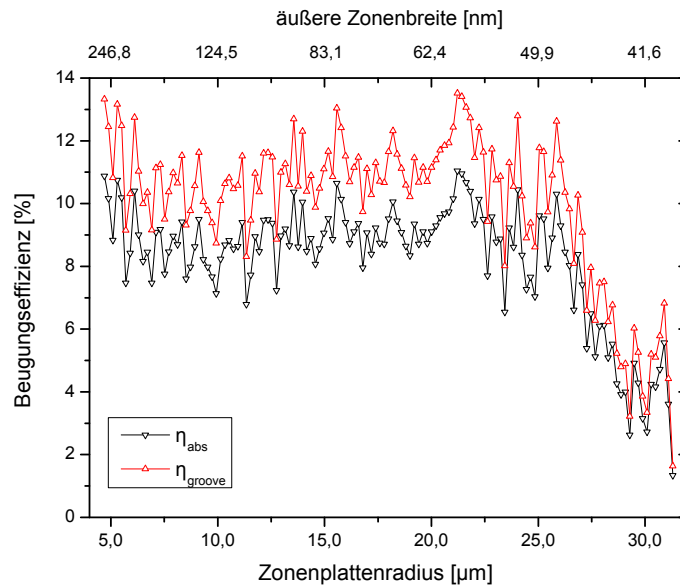


Abbildung 6.14: Beugungseffizienz der Einzel-Lagen-Zonenplatte ZP-40/4 abhängig vom Zonenplattenradius ( $E_{\text{photon}} = 680 \text{ eV}$ ). Der integrale Wirkungsgrad  $\eta_{\text{groove}}$  beträgt 11.0%.

schnitte berechnet. Dazu wird die Intensität der ersten Beugungsordnung über Kreisinge mit zwei Pixeln Breite gemittelt und durch die auf die korrespondierende Kreisingfläche auf der Zonenplatte einfallende Intensität geteilt. Mit Hilfe des Zonenplattenbildungsgesetzes kann jeder Ringfläche eine minimale Zonenbreite zugeordnet werden. In den Abbildungen 6.13 – 6.17 sind die Beugungswirkungsgrade  $\eta_{\text{abs}}$  und  $\eta_{\text{groove}}$  als Funktion des Zonenplattenradius für ausgewählte Einzel- und Doppel-Lagen-Zonenplatten dargestellt.

Aus der orts aufgelösten Beugungseffizienzmessung der Einzel-Lagen-Zonenplatte ZP-40/3 in Abbildung 6.13 wird ersichtlich, daß der Wirkungsgrad bis zu Zonenbreiten von ca. 50 nm konstant um einen Wert von ca. 10% schwankt. Unterhalb einer äußeren Strukturbreite von 50 nm sinkt die Effizienz auf minimale Werte von ca. 2% ab. Die maximale lokale Effizienz beträgt 13.3% bei einer Zonenbreite von ca. 55 nm. Die Effizienzverteilung der Zonenplatte ZP-40/4 zeigt einen vergleichbaren Verlauf in Abhängigkeit vom Zonenplattenradius (vergl. Abb. 6.14). Die Zonen dieser Optik weisen bis zu einer Strukturbreite von ca. 47 nm einen konstant hohen Wirkungsgrad von ca. 11% auf. Zu den äußersten Zonen hin fällt dieser ebenfalls signifikant ab. Im Vergleich zu den Einzel-Lagen-Zonenplatten nehmen die Beugungswirkungsgrade der Doppel-Lagen-Zonenplatten kontinuierlich nach außen hin ab. So sinkt die Effizienz der Zonenplatte OVZP-40/1 von ca. 25% bei 180 nm Strukturbreite auf bis zu 6% im Bereich der minimalen äußeren Zonenbreite von 40 nm ab (siehe Abb. 6.15). Vergleichbare Werte ergeben sich in der Effizienzverteilung der Zonenplatten OVZP-30/2 und OVZP-25/1

## 6 Herstellung und Charakterisierung von Multi-Lagen-Zonenplatten

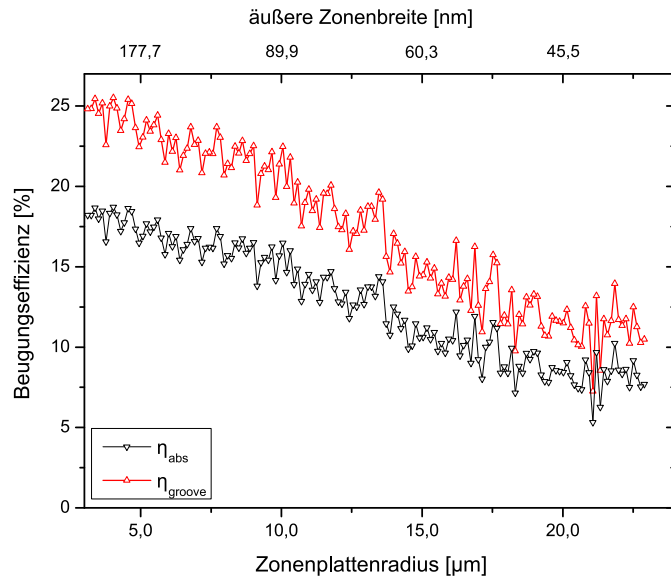


Abbildung 6.15: Beugungseffizienz der Doppel-Lagen-Zonenplatte OVZP-40/1 abhängig vom Zonenplattenradius ( $E_{\text{photon}} = 680 \text{ eV}$ ). Der integrale Wirkungsgrad  $\eta_{\text{groove}}$  beträgt 20.7%.

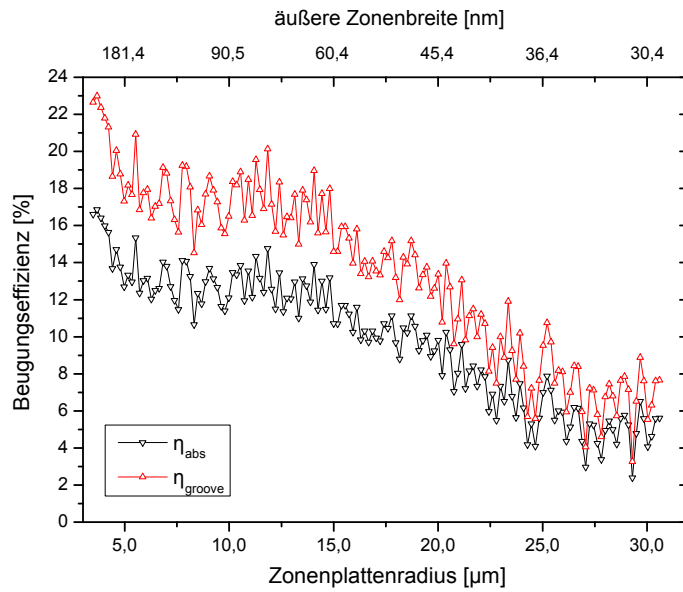


Abbildung 6.16: Beugungseffizienz der Doppel-Lagen-Zonenplatte OVZP-30/2 abhängig vom Zonenplattenradius ( $E_{\text{photon}} = 680 \text{ eV}$ ). Der integrale Wirkungsgrad  $\eta_{\text{groove}}$  beträgt 12.7%.



### 6.3 Wirkungsgradmessungen von übereinandergelagerten Zonenplatten

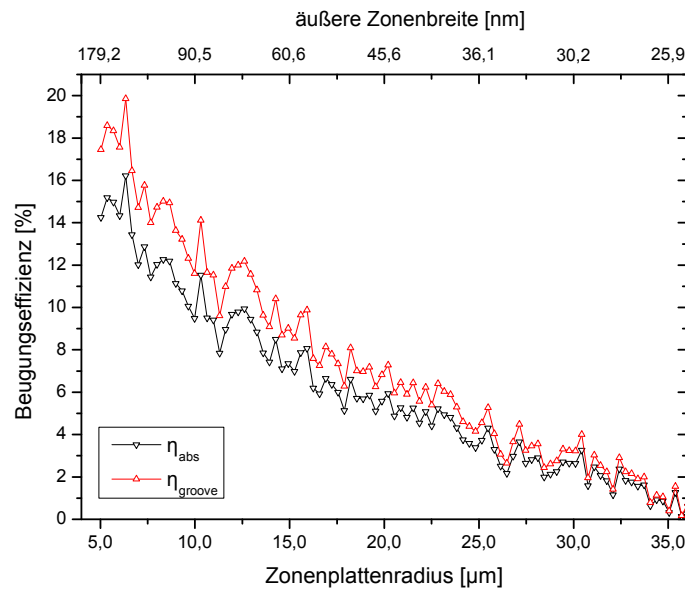


Abbildung 6.17: Beugungseffizienz der Doppel-Lagen-Zonenplatte OVZP-25/1 abhängig vom Zonenplattenradius ( $E_{\text{Photon}} = 680 \text{ eV}$ ). Der integrale Wirkungsgrad  $\eta_{\text{groove}}$  beträgt 7.8%.

bei minimalen Strukturbreiten von 30 und 25 nm (Abb. 6.16 und 6.17). Diese Strukturen zeigen maximale lokale Beugungswirkungsgrade von 22.9% und 20.1% bei inneren Zonenbreiten von ca. 170 – 185 nm. Der Abfall des Beugungswirkungsgrades mit zunehmenden Zonenplattenradius kann auf den aus den SEM- und STEM-Aufnahmen der äußeren Zonen der Doppel-Lagen-Zonenplatten (Abbildungen 6.6 bis 6.10) deutlich erkennbaren Overlay-Fehler zwischen den Zonenplattenlagen zurückgeführt werden, da mit abnehmender Zonenbreite der Einfluß des Strukturversatzes stark zunimmt. Zusätzlich weicht das Strich-Lücke-Verhältnis der hergestellten Zonenstrukturen stark vom Idealwert ab, was sich mit geringer werdender Zonenbreite ebenfalls stärker auf die Beugungseffizienz auswirkt.

Wie bereits in Abschnitt 6.2 beschrieben, wurde an den Viertelansätzen der Zonenplattenstrukturen Abweichungen zwischen den Zonenpositionen beobachtet. Daraus resultierend ist der Versatz zwischen erster und zweiter Zonenplattenlage innerhalb der einzelnen Zonenplattenviertel verschieden, was zur Entstehung von lokalen Zonenplattengebieten mit hohen und abgesenkten Beugungseffizienzen führt. Um diesen Effekt zu verdeutlichen, wurden für die Doppel-Lagen-Zonenplatten OVZP-40/1 und OVZP-30/2 lokal Effizienzen in Zonenplattenbereichen mit gesteigerter Intensität in der ersten Beugungsordnung ermittelt und mit dem Wirkungsgrad der verbleibenden Zonenplattenfläche verglichen. In der Abbildung 6.18 sind die entsprechenden Bereiche in den Intensitätsverteilungen der ersten Ordnung gekennzeichnet.

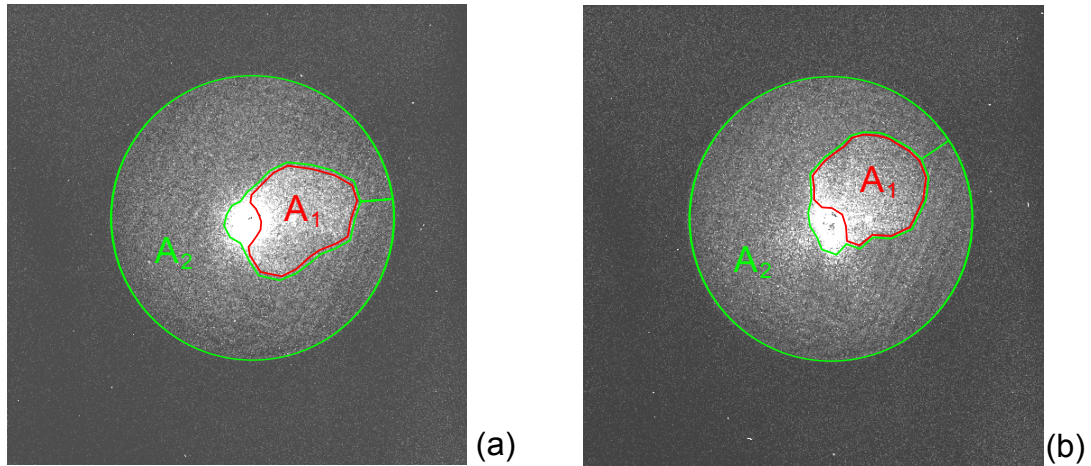


Abbildung 6.18: Intensitätsverteilung der ersten Beugungsordnung der Doppel-Lagen-Zonenplatten (a) OVZP-40/1 und (b) OVZP-30/2 bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 1.8 \text{ nm}$ . Rot umrandet sind Bereiche erhöhter Intensität. Der Beugungswirkungsgrad wurde lokal für die Flächen  $A_1$  und  $A_2$  bestimmt.

Für den Zonenplattenbereich  $A_1$  der Doppel-Lagen-Zonenplatte OVZP-40/1 ergibt sich bei einer Photonenenergie von 680 eV ein lokaler Beugungswirkungsgrad von 22.2%. Somit ist die Beugungseffizienz der Zonen in diesem Bereich 1.5% höher als die integrale Effizienz der Gesamtzonenplattenfläche. Im Vergleich dazu liefert der verbleibende Flächenanteil  $A_2$  der Optik einen Wirkungsgrad von 19.8%. Für die beugenden Strukturen der Zonenplatten OVZP-30/2 wurde bei 680 eV Röntgenenergie eine Effizienz von 19.0% im Flächenbereich  $A_1$  ermittelt. Dieser Wert ist um 6.3% höher als der integrale Beugungswirkungsgrad dieser Zonenplatte von 12.7%. Die in  $A_2$  liegenden Zonenstrukturen dieser Zonenplatte liefern verglichen dazu eine deutlich geringere Effizienz von 9.3%.

Zusammenfassend zeigen die Effizienzmessungen der Multi-Lagen-Zonenplatten eine signifikante Steigerung des Beugungswirkungsgrades der ersten Beugungsordnung basierend auf der Erhöhung des Aspektverhältnisses der beugenden Zonenstrukturen bei Photonenenergien von 680 und 800 eV. Für Doppel-Lagen-Zonenplatten mit 40 nm äußeren Zonenbreiten wurden maximale integrale Wirkungsgrade von 20.7% und 12.6% bei 680 bzw. 800 eV gemessen. Im Vergleich dazu wurden für Einzel-Lagen-Nickelzonenplatten maximale Werte von 17.0%, 11.0% und 5.1% bei Röntgenenergien von 520, 680 und 800 eV ermittelt. In Abhängigkeit vom Zonenplattenradius zeigen die Effizienzen der Einzel-Lagen-Optiken dabei bis zu Strukturbreiten von ca. 50 nm einen konstanten Verlauf und fallen anschließend auf bis zu ca. 2% ab. Im Gegensatz dazu zeigen die Doppel-Lagen-Nickelstrukturen ein kontinuierliches Absinken des Beugungswirkungsgrades mit zunehmenden Zonenplattenradius und entspre-

chend abnehmender Zonenbreite. Die Ursachen für diesen Effizienzverlust der äußeren Strukturen sind der Versatz zwischen den Zonenlagen, Abweichungen vom idealen Strich-Lücke-Verhältnis, Polymerrückstände zwischen den äußeren Zonen und das nach außen abnehmendem Höhenprofil der Zonen. Resultierend aus unterschiedlichen Overlay-Fehlern innerhalb der einzelnen Zonenplattenviertel zeigen die Multi-Lagen-Zonenplatten Inhomogenitäten in der Intensitätsverteilung der ersten Beugungsordnung. In ausgewählten Bereichen dieser Optiken wurden bei 680 eV lokale Beugungswirkungsgrade von 22.2% und 19.0% für 40 bzw. 30 nm äußere Zonenbreiten ermittelt.

### 6.4 Neuer Elektronenstrahlschreiber für Nanometer-Präzisionslithographie am HZB

Um die Entwicklungen im Rahmen der Zonenplattenherstellung am Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB) weiter voranzutreiben, wurde im Oktober 2009 ein neues 100 keV-Elektronenstrahlolithographiesystem *EBPG5000PlusES* (*Vistec Electron Beam Lithography Group*) installiert und im Februar 2010 in Betrieb genommen. Dieser Elektronenstrahlschreiber ist mit einem automatisierten Markenerkennungssystem für höchst präzise Overlay- und Stitchinganwendungen ausgestattet. Neben hohen Elektronenenergien, Auflösungsvermögen und Elektronenströmen zeichnet sich das System durch eine hohe Strahlstabilität und die Möglichkeit für automatisierte Belichtungsverfahren aus. Abbildung 6.19 (a) zeigt das Lithographiesystem. Die Spezifikationen der wichtigsten Maschinenparameter des Elektronenstrahlschreibers sind in Tabelle 6.4 zusammengefasst. Im Rahmen der Abnahmetests nach der Installation des neuen Systems wur-

Parameter	Spezifikationen <i>EBPG5000PlusES</i>
Elektronenenergie [keV]	50 / 100
max. Schreibfeldgröße [ $\mu\text{m}$ ]	410 (50 keV) / 256 (100 keV)
Elektronenstrom [nA]	0.1 – 100
Patterngenerator-Frequenz [MHz]	20
DAC-Auflösung	16 Bit (Hauptfeld) / 14 Bit (Subfeld)
min. Strahlfleckgröße [nm]	2.2 (100 keV)
On-Axis-Auflösung [nm]	8.0 (100 keV)
Laserstage-Auflösung [nm]	0.6

Tabelle 6.4: Spezifizierte Werte der wichtigsten Parameter des *VISTEC EBPG5000PlusES* Elektronenstrahlolithographiesystems.

den Untersuchungen zur erzielbaren Overlay-Genauigkeit durchgeführt. In Analogie zu den in Abschnitt 5.2.3 beschriebenen Experimenten wurden dazu zwei Belichtungssets bestehend aus den geraden beziehungsweise ungeraden äußeren Zonen einer Mikrozonplatte in separaten EBL-Schritten in ein Schreibfeld belichtet. Als Elektronenstrahlresist für diese Versuche wurde ZEP7000 mit einer Schichtdicke von ca. 40 nm auf einem festen Siliziumsubstrat verwendet. Die Belichtungen wurden bei einer Elektro-

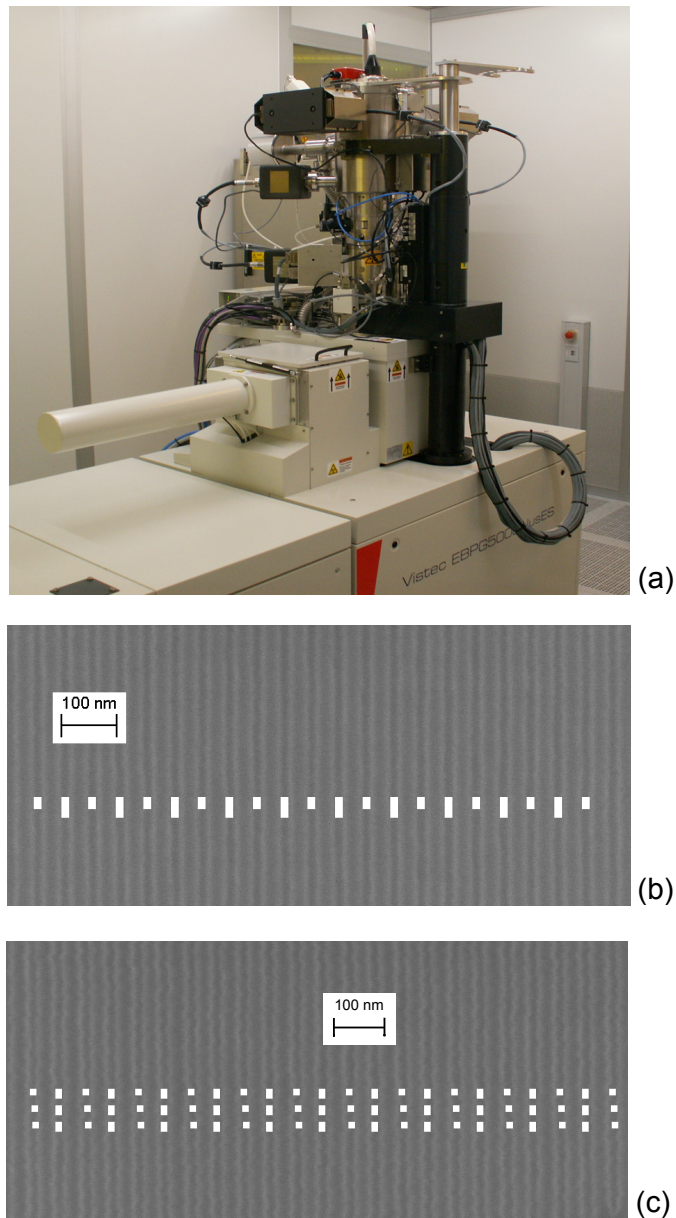


Abbildung 6.19: (a) Aufnahme des *EBPG5000PlusES* (*Vistec Electron Beam Lithography Group*) EBL-Systems am Helmholtz-Zentrum Berlin. (b) / (c) SEM-Aufnahme von Kreisgitter-Strukturen, welche in zwei unabhängigen, aufeinander folgenden EBL-Schritten erzeugt wurden. Zur Bestimmung des Overlay-Fehlers wurden die Linien in einer Bildbearbeitungssoftware mit periodischen Rechteckstrukturen angepasst.

nenenergie von 100 keV durchgeführt. Im Anschluß an die EBL wurde der Resist entwickelt und SEM-Aufnahmen der belichteten Strukturen angefertigt. Um den Overlay-Fehler zu bestimmen, wurden die Perioden der zwei belichteten Zonensets aus den SEM-Aufnahmen ermittelt und mit Hilfe einer geeigneten Bildbearbeitungssoftware in Form von periodischen Rechtecken an die Zonenstrukturen angepasst (siehe Abbildung 6.19 (b) und (c)). Diese Rechteckstrukturen wurden anschließend in Schritten von je einem Bildpunkt gegeneinander verschoben, bis eine deutliche Positionsabweichung von den Resiststrukturen ersichtlich wurde. Aus der Differenz der Positionabweichungen, der Periode und der Pixelgröße der SEM-Aufnahmen kann der Overlay-Fehler der Belichtung berechnet werden. Die Auswertung der Overlay-Experimente ergaben für die 5 besten von 10 Belichtungen sowohl in x- als auch in y-Richtung Overlay-Fehler im Bereich zwischen 3.1 – 4.7 nm. Um eine exakte, statistische Aussage über den minimal erzielbaren Overlay-Fehler des Lithographiesystems treffen zu können, müssen weitere Untersuchungen durchgeführt werden. Diese Ergebnisse bilden die Basis für weitergehende Entwicklungen zur Verbesserung der Overlay-Genauigkeit bei der Herstellung von hoch präzise übereinandergelagerten Volumen-Zonenplatten.



## 7 Diskussion und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde erstmals theoretisch und experimentell die Realisierbarkeit von Volumenzonenplatten untersucht. Diese Optiken haben das Potential mit modernen Röntgenmikroskopen Ortsauflösungen im sub-10 nm-Bereich bei gleichzeitig hohen Beugungseffizienzen zu erzielen. Daher wurden im Rahmen dieser Arbeit die Beugungseigenschaften von Zonenplattenobjektiven mit hohen Aspektverhältnissen untersucht. Zur praktischen Realisierung derartiger Röntgenoptiken wurde ein Nanostrukturierungsverfahren basierend auf der Nanometer genauen Überlagerung von Einzel-Zonenplatten entwickelt.

Das Auflösungsvermögen eines Röntgenmikroskopes wird durch die numerische Apertur  $NA$  der zur Abbildung eingesetzten Röntgenoptik bestimmt. Im Fall von Zonenplattenobjektiven skaliert  $NA$  mit dem Quotienten aus der äußeren Zonenbreite  $dr_n$  und der verwendeten Beugungsordnung  $m$ . Daraus resultiert, daß das Auflösungsvermögen nur durch Verringerung der äußeren Strukturbreiten oder durch Verwendung von hohen Beugungsordnungen für die röntgenmikroskopische Abbildung erhöht wird. Die Herstellung von immer kleineren Nanostrukturen ist durch die technologischen Anforderungen bei den eingesetzten Nanofabrikationsverfahren limitiert. Alternativ wird eine Auflösungssteigerung durch die Verwendung von hohen Beugungsordnungen für die röntgenmikroskopische Abbildung erzielt. Neben dem Auflösungsvermögen ist der Beugungswirkungsgrad eine wichtige Größe einer Röntgenoptik. Nach der klassischen, geometrisch-optischen Theorie, nimmt der Wirkungsgrad einer Zonenplatte mit dem Quadrat der zur Abbildung verwendeten Beugungsordnung ab. Im Gegensatz dazu zeigen elektrodynamische Rechnungen, daß zur optischen Achse geneigte Zonenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen den in ausgewählte hohe Ordnungen gebeugten Intensitätsanteil der einfallenden Röntgenstrahlung signifikant erhöhen. Mit Hilfe von Rechnungen nach der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen wurden in dieser Arbeit die Beugungseffekte an geneigten Zonenplattenstrukturen mit hohen Aspektverhältnissen untersucht. Die Ergebnisse zeigen, daß durch Einhaltung der lokalen Bragg-Bedingung bei idealen Neigungswinkeln der Wirkungsgrad dieser Volumenzonenplatten in hohen Ordnungen um mehr als eine Größenordnung gegenüber den Vorhersagen der klassischen Theorie dünner Gitter gesteigert werden kann.

In der Praxis können dreidimensionale, geneigte Nanostrukturen aufgrund der technologischer Einschränkungen bei der Nanostrukturierung nur mit Hilfe einer Annäherung des Neigungswinkels realisiert werden. Dazu werden Einzel-Zonenplatten mit abnehmenden Zonenradien sehr präzise übereinandergeschichtet. Durch Herstellungsfehler in den verwendeten Strukturierungsprozessen können die strukturellen Parameter der Multi-Lagen-Zonenplatten von den Idealwerten abweichen. Um die Auswirkungen dieser Abweichungen auf die Beugungseigenschaften von Volumenzonen-

platten zu untersuchen, wurde der Einfluß von Prozessierungsfehlern auf den Beugungswirkungsgrad mittels elektrodynamischer Rechnungen auf Basis der rigorosen Theorie gekoppelter Wellen untersucht. Die Rechnungen liefern Toleranzbereiche für die ausgewählten Parameter, in denen die erzielbare Beugungseffizienz nur in geringem Maße beeinflusst wird. Beispielsweise werden mindestens 80% der Effizienz der fünften Beugungsordnung einer Multi-Lagen-Zonenplatte mit geneigten Zonen (fünf Nickel-Einzel-Zonenplatten, effektive äußere Zonenbreite  $dr_n = 8 \text{ nm}$ ) für Overlay-Fehler und Ungenauigkeiten im Strich-Lücke-Verhältnis  $\leq 2 \text{ nm}$  erhalten. Dies entspricht für die gewählten Zonenplattenparameter etwa 15% der äußeren Zonenperiode. Weiterhin darf die Einzel-Schichthöhe dieser Strukturen nicht mehr als 30 nm vom Idealwert 180 nm abweichen. Im Vergleich dazu wurden für ungeneigte Multi-Lagen-Strukturen für den multi-keV-Röntgenbereich deutlich größere Toleranzbereiche ermittelt. Um einen signifikanten Wirkungsgradverlust dieser Optiken zu vermeiden, sollten der Versatz der einzelnen Zonenplattenlagen und die Variation im Strich-Lücke-Verhältnis kleiner als 20% der minimalen Strukturperiode sein. Aus den theoretischen Untersuchungen ergeben sich sehr hohe Anforderungen in Hinsicht auf die Genauigkeiten und Reproduzierbarkeiten der verwendeten Strukturierungsprozesse bei der Herstellung von hocheffizienten Volumenzonenplatten. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Rechnungen beschreiben den Einfluß von Herstellungsfehlern auf den Beugungswirkungsgrad der Zonenplattenstrukturen. Von weiterem entscheidendem Interesse für die Abbildung in hohen Beugungsordnungen ist der Einfluß dieser Faktoren auf die Auflösung derartiger Röntgenoptiken, der in zukünftigen elektrodynamischen Berechnungen untersucht werden sollte.

Der experimentelle Teil dieser Arbeit beschäftigt sich mit der Realisierung von Volumenzonenstrukturen. Auf Basis eines Tri-Level-Prozesses wurde dazu ein Stack-Prozeß zur Überlagerung einzelner Zonenplattenlagen entwickelt. Der erforderliche Kippwinkel der Zonenstrukturen wird dabei approximiert, indem die Zonenradien innerhalb der Einzel-Zonenplatten mit jeder Zonenplattenschicht verringert werden. Die bereits zur Herstellung von Zonenplatten angewandten Strukturierungsverfahren basierend auf Elektronenstrahlolithographie, Strukturübertragung durch Trockenätzen und galvanischer Abscheidung mussten für den Stack-Prozeß um weitere Nanotechnologieschritte erweitert werden. Dies beinhaltete unter anderen die Entwicklung eines Planarisierungsprozesses für Zonenplattenstrukturen basierend auf chemisch mechanischem Polieren mit Nanometer genau kontrollierbarem Abtrag, eines Verfahrens zum Härten der Polymergalvanoform durch Strahlungsvernetzen mit Elektronen und eines Prozesses zur nachträglichen Herstellung von geeigneten Trägermembranen für die Multi-Lagen-Zonenplatten durch anisotropes, nass-chemisches Ätzen des Siliziumsubstrates. Im Rahmen dieser Arbeit ermöglichte die experimentelle Realisierung des Stack-Verfahrens erstmalig den Aufbau von übereinandergelagerten Multi-Lagen-Zonenplatten mit minimalen Strukturbreiten bis zu 25 nm. Die Genauigkeit der prozessierten Multi-Lagen-Nanostrukturen wurde mittels SEM- und STEM-Aufnahmen charakterisiert. In beiden Untersuchungen zeigte sich ein signifikanter Versatz zwischen den einzelnen Zonenplattenlagen. Weiterhin wurden Positionierungsungenauigkeiten an den Viertelansätzen der Zonen und ein erhöhtes Strich-Lücke-Verhältnis der äußeren Zo-



nenstrukturen ersichtlich. Die STEM-Aufnahmen der äußeren Zonenplattenbereiche zeigten zusätzlich Polymerreste in den Zwischenräumen der äußeren Nickelzonen. Um den Einfluß dieser Herstellungsfehler auf die Beugungseigenschaften der hergestellten Multi-Lagen-Zonenplatten zu untersuchen, wurden integrale und lokale Wirkungsgradmessungen der ersten Beugungsordnung durchgeführt.

Die Messungen des integralen Beugungswirkungsgrade zeigen aufgrund des erhöhten Aspektverhältnisses der Multi-Lagen-Zonenstrukturen eine deutliche Steigerung der Effizienz gegenüber experimentell ermittelten Werten von Einzel-Lagen-Zonenplatten. Für zweilagige Nickelzonenplatten mit äußeren Strukturbreiten von 40 nm wurde ein maximaler integraler Wirkungsgrad von 20.7% bei einer Photonenenergie von 680 eV ermittelt. Im Vergleich dazu ergaben Effizienzmessungen von Einzel-Lagen-Zonenplatten mit 40 nm minimaler Zonenbreite bei dieser Röntgenenergie maximale Effizienzwerte von 11.0%. Dies entspricht einer Verdopplung der Effizienz bzw. in einem Vollfeldmikroskop einer Halbierung der applizierten Strahlendosis. Für abnehmende äußere Strukturbreiten sinken die experimentell ermittelten Wirkungsgrade. Die Messung von Multilagen-Zonenplatten mit 30 nm minimaler Zonenbreite ergaben bei  $E_{\text{photon}} = 680 \text{ eV}$  maximale integrale Effizienzen von 12.7%. Lokale Effizienzmessungen in Abhängigkeit vom Zonenplattenradius zeigen, daß der Wirkungsgrad der Multilagen-Zonenplatten mit zunehmenden Radius und somit abnehmender Strukturbreite kontinuierlich sinkt. Dieser Effizienzabfall wird durch den Versatz zwischen den einzelnen Zonenplattenlagen begründet. Zusätzlich wird dieser Effekt durch ein abweichendes Strich-Lücke-Verhältnis, Polymerrückständen zwischen den äußeren Zonenstrukturen und ein nach außen abnehmendes Höhenprofil der Nickelzonen verstärkt.

Um in Zukunft die Herstellung von Volumenplatten voranzutreiben, muß die Genauigkeit bei der Overlay-Elektronenstrahlolithographie im Bereich von wenigen Nanometern liegen. Zu diesem Zweck wird zukünftig ein neues Elektronenstrahlolithographiesystem (*EBPG5000plusES*, *Vistec Electron Beam Lithography Group*) für die Belichtungen im Rahmen der Zonenplattenherstellung am Helmholtz-Zentrum Berlin eingesetzt. Dieses im Februar 2010 in Betrieb genommene 100 keV-System bietet neben einer gesteigerten Elektronenenergie, Auflösungsvermögen und Elektronenströmen, sowie einer hohen Strahlstabilität auch sehr geringe Overlay- und Stitching-Fehler im Bereich von wenigen Nanometern. Letztere werden mittels einer automatisierten, hoch präzisen Schreibfeldmarkenerkennung erzielt und bilden die Basis für zukünftige Overlay-Belichtungen mit sehr hohen Genauigkeiten im Rahmen der Herstellung von übereinandergelagerten Zonenplattenstrukturen. Weiterhin besteht ein großes Potential zur Verbesserung der Nanostrukturen auf dem Gebiete der Resistentwicklung und der Nano-Galvanik. Mittels Kryo-Entwicklung des verwendeten ZEP7000-Elektronenresists können die erzielbaren minimalen Linienbreiten verringert werden. Der Einsatz von gepulsten Abscheidetechniken führt zu homogenen Höhenprofilen der Zonenplattenstrukturen bei der galvanischen Abscheidung. Die Weiterentwicklung dieser Nanotechnologien führt zu einer Verringerung der Prozessierungsfehler bei der Herstellung von Multilagen-Zonenplatten. In Verbindung mit der in dieser Arbeit demonstrierten praktischen Realisierbarkeit von Multilagen-Zonenplatten ermöglicht dies zukünf-

## *7 Diskussion und Ausblick*

tig die Herstellung von dreidimensionalen Zonenplattenstrukturen für den Einsatz als hochauflösende Objektive für Abbildungen in hohen Beugungsordnungen mit Ortsauflösungen im sub-10 nm-Bereich oder als hocheffiziente Optiken für den multi-keV-Röntgenbereich. Davon profitieren mikroskopische Anwendungen aus den Bereichen der Lebens- und Materialwissenschaften.

# Literaturverzeichnis

- [1] ABBEY, B. ; WILLIAMS, G. J. ; PFEIFER, M. A. ; CLARK, J. N. ; PUTKUNZ, C. T. ; TORRANCE, A. ; MCNULTY, I. ; LEVIN, T. M. ; PEELE, A. G. ; NUGENT, K. A.: Quantitative coherent diffractive imaging of an integrated circuit at a spatial resolution of 20 nm. In: *Appl. Phys. Lett.* 93 (2008), S. 214101
- [2] ANDERS, S. ; MAY, T. ; ZAKOSARENKO, V. ; STARKLOFF, M. ; ZIEGER, G. ; MEYER, H.-G.: Structured SiN membranes as platform for cryogenic bolometers. In: *Microelectronic Engineering* 86 (2008), S. 913–915
- [3] ANDERSEN, G.: Large optical photon sieve. In: *Optics Letters* 30 (2005), S. 2976–2978
- [4] ANDERSON, E. H. ; HA, D. ; LIDDLE, J. A.: Sub-pixel alignment for direct-write electron beam lithography. In: *Microelectronic Engineering* 73–74 (2004), S. 74–79
- [5] ARISTOV, V. ; GRIGORIEV, M. ; KUZNETSOV, S. ; SHABELNIKOV, L. ; YUNKIN, V. ; WEITKAMP, T. ; RAU, C. ; SNIGIREVA, I. ; SNIGIREV, A. ; HOFFMANN, M. ; VOGES, E.: X-ray refractive planar lens with minimized absorption. In: *Appl. Phys. Lett.* 77 (2000), S. 4058–4060
- [6] ARTZNER, G. E. ; DELABOUDINIÈRE, J. P. ; SONG, X.: Photon sieves as EUV telescopes for Solar Orbiter. In: *Proc. SPIE* 4853 (2003), S. 158–161
- [7] ATTWOOD, D. T.: *Soft x-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999
- [8] BALAIĆ, D. X. ; NUGENT, K. A. ; BARNEA, Z. ; GARRETT, R. ; WILKINS, S. W.: Focusing of X-rays by Total External Reflection from a Paraboloidally Tapered Glass Capillary. In: *J. Synchrotron Rad.* 2 (1995), S. 296–299
- [9] BARTY, A. ; MARCHESINI, S. ; CHAPMAN, H. N. ; CUI, C. ; HOWELLS, M. R. ; SHAPIRO, D. A. ; MINOR, A. M. ; SPENCE, J. C. H. ; WEIERSTALL, U. ; ILAVSKY, J. ; NOY, A. ; HAU-RIEGE, S. P. ; ARTYUKHIN, T. A. B. adn B. A. B. adn Baumann ; WILLEY, T. ; STOLKEN, J. ; BUUREN, T. van ; KINNEY, J. H.: Three-Dimensional Coherent X-Ray Diffraction Imaging of a Ceramic Nanofoam: Determination of Structural Deformation Mechanisms. In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), S. 055501
- [10] BECKMANN, A.: *Messung des Beugungswirkungsgrades von Mikrozonenplatten als Funktion der Strukturbreite*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 1997

- [11] BERGLUND, M. ; RYMELL, L. ; PEUKER, M. ; WILHEIN, T. ; HERTZ, H. M.: Compact water-window transmission X-ray microscopy. In: *J. Microsc.* 197 (2000), S. 268–273
- [12] BERGMANN ; SCHÄFER: *Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 3, Optik*. Walter de Gruyter, Berlin, 1993
- [13] BILDERBACK, D. H. ; THIEL, D. J. ; PAHL, R. ; BRISTER, K. E.: X-ray Applications with Glass-Capillary Optics. In: *J. Synchrotron Rad.* 1 (1994), S. 37–42
- [14] BILLITER, J.: *Galvanotechnik*. Springer, Wien, 1957
- [15] BJEUMIKHOV, A. ; BJEUMIKHOVA, S.: *Capillary Optics for X-Rays*. In: ERKO, IDIR, KRIST and MICHETTE [29], 2008
- [16] BORN, W. ; WOLF, E.: *Principles of Optics*. Pergamon Press, Oxford, 1980
- [17] BROERS, A. N.: Resolution limits for electron-beam lithography. In: *IBM Journal of Research and Development* 32 (1988), S. 502–513
- [18] CAO, Q. ; JAHNS, J.: Focusing analysis of the pinhole photon sieve: individual far-field model. In: *J. Opt. Soc. Am. A* 19 (2002), S. 2387–2393
- [19] CAO, Q. ; JAHNS, J.: Nonparaxial model for the focusing of high-numerical-aperture photon sieves. In: *J. Opt. Soc. Am. A* 20 (2003), S. 1005–1012
- [20] CARL ZEISS, GmbH: *Handbuch für die Rasterelektronenmikroskope SUPRA(VP) und ULTRA*. 2004
- [21] CHAO, W.: *Resolution Characterization and Nanofabrication for Soft X-ray Zone Plate Microscopy*, University of California, Berkeley, Dissertation, 2005
- [22] CHAO, W. ; HARTENECK, B. D. ; LIDDLE, J. A. ; ANDERSON, E. H. ; ATTWOOD, D. T.: Soft X-ray microscopy at a spatial resolution better than 15nm. In: *Nature* 435 (2005), S. 1210–1213
- [23] CHU, R. S.: Modal Theory of Spatially Periodic Media. In: *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* 25 (1977), S. 18–24
- [24] CUI, B. ; WU, W. ; KONG, L. ; SUN, X. ; CHOU, S. Y.: Perpendicular quantized magnetic disks with 45 Gbits on a 4 times 4 cm area. In: *J. Appl. Phys.* 85 (1999), S. 5534–5536
- [25] DI BARI, G. A.: *Electrodeposition of Nickel*. In: SCHLESINGER and PAUNOVIC [95], 2000
- [26] DU, T. ; VIJAYAKUMAR, A. ; SUNDARAM, K. B. ; DESAI, V.: Chemical mechanical polishing of nickel for applications in MEMS devices. In: *Microelectron. Eng.* 75 (2004), S. 234–241

- [27] DÜVEL, A.: *Mehrfachschichten auf Mikrodrähten als Phasenzonenplatten für Röntgenmikroskopie*, Universität Göttingen, Dissertation, 1999
- [28] EISEBITT, S. ; LÜNING, J. ; SCHLOTTER, W. F. ; LÖRGEN, M. ; HELLWIG, O. ; EBERHARDT, W. ; STOHR, J.: Lensless imaging of magnetic nanostructures by X-ray spectro-holography. In: *Nature* 432 (2004), S. 885–888
- [29] ERKO, A. ; IDIR, M. ; KRIST, T. ; MICHETTE, A. G.: *Modern Developments in X-Ray and Neutron Optics*. Springer Verlag, Berlin und Heidelberg, 2008
- [30] FENG, Y. P. ; DECKMAN, H. W. ; SINHA, S. K.: Mode-mixing in an x-ray thin-film waveguide. In: *Appl. Phys. Lett.* 64 (1994), S. 930–932
- [31] FENG, Y. P. ; SINHA, S. K. ; DECKMAN, H. W. ; HASTINGS, J.B. ; SIDDONS, D. P.: X-Ray Flux Enhancement in Thin-Film Waveguides Using Resonant Beam Couplers. In: *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993), S. 537–540
- [32] FLUCKIGER, D.: *GSolver Version 5.1 User's Guide*. 2009
- [33] FOLLATH, R. ; SCHMIDT, J. S. ; WEIGAND, M. ; FAUTH, K.: The X-ray microscopy beamline UE46-PGM2 at BESSY. In: *Proceedings of SRI2009* im Druck (2010)
- [34] GAYLORD, T. K. ; MOHARAM, M. G.: Analysis and Applications of Optical Diffraction by Gratings. In: *Proc. of IEEE* 73 (1985), S. 894–937
- [35] GUTTMANN, P. ; ZENG, X. ; FESER, M. ; HEIM, S. ; YUN, W. ; SCHNEIDER, G.: Ellipsoidal capillary as condenser for the BESSY full-field x-ray microscope. In: *Journal of Physics: Conference Series* 186 (2009), S. 012064–012066
- [36] HAMBACH, D.: *Nanostrukturen mit hohen Aspektverhältnis als lichtstarke diffraktive Röntgenoptiken für hohe Beugungsordnungen*, Universität Göttingen, Dissertation, 2001
- [37] HAMBACH, D. ; SCHNEIDER, G. ; GULLIKSON, E. M.: Efficient high order diffraction of EUV and soft X-radiation by nanostructured volume gratings. In: *Opt. Lett.* 15 (2001), S. 1200–1202
- [38] HEIM, S. ; FRIEDRICH, D. ; GUTTMANN, P. ; REHBEIN, S. ; CHUMAKOV, D. ; RITZ, Y. ; SCHNEIDER, G. ; SCHMEISSER, D. ; ZSCHECH, E.: Dynamical X-ray Microscopy Study of Stress-Induced Voiding in Cu Interconnects. In: *AIP Conf. Proc.* 1143 (2009), S. 20–30
- [39] HEIM, S. ; GUTTMANN, P. ; REHBEIN, S. ; WERNER, S. ; SCHNEIDER, G.: Energy-tunable full-field x-ray microscopy: Cryo-tomography and nano-spectroscopy with the new BESSY TXM. In: *Journal of Physics: Conference Series* 186 (2009), S. 012041–012043

- [40] HENKE, B. L. ; GULLIKSON, E. M. ; DAVIS, J. C.: X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission and reflection at  $E=50\text{--}30,000\text{ eV}$ ,  $Z=1\text{--}92$ . In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 54 (1993), S. 181–342
- [41] HENKE, B. L. ; LEE, P. ; TANAKA, T. J. ; SHIMABUKURO, R. L. ; FUJIKAWA, B. K.: Low-Energy X-Ray Interaction Coefficients: Photoabsorption, Scattering and Reflection. In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 27 (1982), S. 1–144
- [42] HEUBERGER, A.: *Mikromechanik*. Springer Verlag, Berlin, 1989
- [43] HIGNETTE, O. ; CLOETENS, P. ; MORAWE, C. ; BOREL, C. ; LUDWIG, W. ; BERNARD, P. ; ROMMEVEAUX, A. ; BOHIC, S.: Nanofocusing at ESRF Using Graded Multilayer Mirrors. In: *AIP Conf. Proc.* 879 (2007), S. 792–795
- [44] HOLMBERG, A. ; LINDBLOM, M. ; HERTZ, H. M.: Controlled electroplating for high-aspect-ratio zone-plate fabrication. In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 24 (2006), S. 2592–2596
- [45] HOLMBERG, A. ; REHBEIN, S. ; HERTZ, H. M.: Nano-fabrication of condenser and micro-zone plates for compact X-ray microscopy. In: *Microelectron. Eng.* 73–74 (2004), S. 639–643
- [46] JAKSCH, H.: Neues Konzept für ein hochauflösendes Niederspannungs-Schottky-FE-SEM. In: *Chemie in Labor und Biotechnik* 47 (1996), S. 452–456
- [47] JAMES, R. W.: *The Optical principles of the diffraction of x-rays*. Ox Bow Press, Woodbridge, 1982
- [48] JARK, W. ; PERENNES, F. ; MATTEUCCI, L. ; DE CARO, L.: *CLESSIDRA: focusing hard x-rays efficiently with small prism arrays*. In: ERKO, IDIR, KRIST and MICHETTE [29], 2008
- [49] JARRE, A. ; FUHSE, C. ; OLLINGER, C. ; SEEGER, J. ; TUCOULOU, R. ; SALDITT, T.: Two-Dimensional Hard X-Ray Beam Compression by Combined Focusing and Waveguide Optics. In: *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), S. 074801
- [50] JIANG, H. ; RAMUNNO-JOHNSON, D. ; SONG, C. ; AMIRBEKIAN, B. ; KOHMURA, Y. ; NISHINO, Y. ; TAKAHASHI, Y. ; ISHIKAWA, T. ; MIAO, J.: Nanoscale Imaging of Mineral Crystals inside Biological Composite Materials Using X-Ray Diffraction Microscopy. In: *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008), S. 038103
- [51] KANG, H. C. ; MASER, J. ; STEPHENSON, G. B. ; LIU, C. ; CONLEY, R. ; T., Macrander A. ; VOGT, S.: Nanometer Linear Focusing of Hard X-Rays by a Multilayer Laue Lens. In: *Phys. Rev. Lett.* 96 (2006), S. 127401
- [52] KANG, H. C. ; STEPHENSON, G. B. ; LIU, C. ; CONLEY, R. ; KHACHATRYAN, R. ; WIECZOREK, M. ; T., Macrander A. ; YAN, H. ; MASER, J. ; HILLER, J. ; KORITALA, R.: Sectioning of multilayers to make a multilayer laue lens. In: *Rev. Sci. Instrum.* 78 (2007), S. 046103

- [53] KANG, H. C. ; YAN, H. ; WINARSKI, R. P. ; HOLT, M. V. ; MASER, J. ; LIU, C. ; CONLEY, R. ; VOGT, S. ; T., Macrander A. ; STEPHENSON, G. B.: Focusing of hard x-rays to 16 nanometers with a multilayer Laue lens. In: *Appl. Phys. Lett.* 92 (2008), S. 221114
- [54] KAULICH, B.: *Phasenzonenplatten für die Röntgenmikroskopie im Photonenbereich von 2 - 8 keV*, Universität Göttingen, Dissertation, 1996
- [55] KIM, N.-H. ; CHOI, G.-W. ; SEO, Y.-J. ; LEE, W.-S.: Effects of various oxidizers on chemical mechanical polishing performance of nickel for microelectromechanical system applications. In: *J. Vac. Sci. Technol. A* 24 (2006), S. 1297–1301
- [56] KIPP, L. ; SKIBOWSKI, M. ; JOHNSON, R. L. ; BERNDT, R. ; ADELUNG, R. ; HARM, S. ; SEEMANN, R.: Sharper images by focusing soft X-rays with photon sieves. In: *Nature* 414 (2001), S. 184–188
- [57] KIRKPATRICK, P. ; BAEZ, A. V.: Formation of optical images by X-rays. In: *J. Opt. Soc. Am.* 38 (1948), S. 766–774
- [58] KIRZ, J.: Phase Zone Plates for X-Rays and Extreme UV. In: *J. Opt. Soc. Am.* 64 (1974), S. 301–309
- [59] KNÖCHEL, C.: *Anwendung und Anpassung der tomographischen Verfahren in der Röntgenmikroskopie*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2005
- [60] KOGELNIK, H.: Coupled Wave Theory for Thick Volume Hologram Gratings. In: *Bell Syst. Techn. J.* 48 (1969), S. 2909–2947
- [61] KÖGLER, U.: *Beugungswirkungsgrad als Funktion des Zonenplattenradius*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 1993
- [62] KÖHLER, M.: *Ätzverfahren für die Mikrotechnik*. WILEY-VCH Verlag GmbH, Weinheim, 1998
- [63] KOUROUKLIS, C. ; KOHLMEIER, T. ; GATZEN, H. H.: The application of chemical mechanical polishing for planarizing a SU8 permalloy combination used in MEMS devices. In: *Sens. Actuators* 106 (2003), S. 263–266
- [64] KRAUSS, P. R. ; CHOU, S. Y.: Fabrication of planar quantum magnetic disk structure using electron beam lithography, reactive ion etching, and chemical mechanical polishing. In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 13 (1995), S. 2850–2852
- [65] LARRUQUERT, J. I. ; MICHETTE, A. G. ; MORAWE, Ch. ; BOREL, Ch. ; VIDAL, B.: *Specially Designed Multilayers*. In: ERKO, IDIR, KRIST and MICHETTE [29], 2008
- [66] LENGELER, B. ; SCHROER, J. C. and T. C. and Tümmeler ; BENNER, B. ; RICHWIN, M. ; SNIGIREV, A. ; SNIGIREVA, I. ; DRAKOPOULOS, M.: Imaging by parabolic refractive lenses in the hard X-ray range. In: *J. Synchrotron Rad.* 6 (1999), S. 1153–1167

- [67] LENGELER, B. ; TÜMMLER, J. ; SNIGIREV, A. ; SNIGIREVA, I. ; RAVEN, C.: Transmission and gain of singly and doubly focusing refractive X-ray lenses. In: *J. Appl. Phys.* 84 (1998), S. 5855–5861
- [68] LINDBLOM, M. ; HERTZ, H. M. ; HOLMBERG, A.: Pulse reverse plating for uniform nickel height in zone plates. In: *J. Vac. Sci. Technol.* 24 (2006), S. 2848–2851
- [69] LINDBLOM, M. ; HERTZ, H. M. ; HOLMBERG, A.: SU-8 plating mold for high-aspect-ratio nickel zone plates. In: *Microelectronic Engineering* 84 (2007), S. 1136–1139
- [70] LIU, C. ; CONLEY, R. ; T., Macrander A. ; MASER, J. ; KANG, H. C. ; STEPHENSON, G. B.: A multilayer nanostructure for linear zone-plate applications. In: *Thin Solid Films* 515 (2006), S. 654–657
- [71] MAGNUSSEN, R. ; GAYLORD, T. K.: Equivalence of Multiwave Coupled-Wave Theory and Modal Theory for Periodic Media Diffraction. In: *J. Opt. Soc. Am.* 86 (1978), S. 1777–1779
- [72] MANOS, D. M. ; FLAMM, D. L.: *Plasma Etching*. Academic Press, Boston, 1989
- [73] MASER, J.: *Theoretische Beschreibung der Beugungs- und Abbildungseigenschaften hochauflösender Zonenplatten für die Röntgenmikroskopie*, Universität Göttingen, Dissertation, 1994
- [74] MASER, J. ; SCHMAHL, G.: Coupled-wave description of the diffraction by zone plates with high aspect ratios. In: *Opt. Comm.* 89 (1992), S. 355–362
- [75] MASER, J. ; STEPHENSON, G. B. ; VOGT, S. ; YUN, W. ; T., Macrander A. ; KANG, H. C. ; LIU, C. ; CONLEY, R.: Multilayer Laue Lenses as High-Resolution X-ray Optics. In: *Proc. SPIE* 5539 (2004), S. 185–194
- [76] MENZ, W. ; BLEY, P.: *Mikrosystemtechnik für Ingenieure*. VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, 1993
- [77] MIMURA, H. ; YUMOTO, H. ; MATSUYAMA, S. ; SANO, Y. ; YAMAMURA, K. ; MORI, Y. ; YABASHI, M. ; NISHINO, Y. ; TAMASAKU, K. ; ISHIKAWA, T. ; ; YAMAUCHI, K.: Efficient focusing of hard x-rays to 25 nm by a total reflection mirror. In: *Appl. Phys. Lett.* 90 (2007), S. 051903
- [78] MOHARAM, H. ; GAYLORD, T. K.: Rigorous Coupled-Wave Analysis of Planar-Grating Diffraction. In: *J. Opt. Soc. Am.* 17 (1981), S. 811–818
- [79] MOREAU, W.: *Semiconductor Lithography - Principles, Practices and Materials*. Plenum Press, New York, 1988
- [80] NAMATSU, H. ; NAGASE, M. ; KURIHARA, K. ; IWADATE, K. ; FURUTA, T. ; MURASE, K.: Fabrication of sub-10-nm silicon lines with minimum fluctuation. In: *J. Vac. Sc. Technol.* 13 (1995), S. 1473–1476



- [81] NAZMOV, V. ; REZNIKOVA, E. ; LAST, A. ; MOHR, J. ; SAILE, V. ; DiMICHEL, M. ; GÖTTERT, J.: Crossed planar X-ray lenses made from nickel for X-ray micro focusing and imaging applications. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 39306 (2007), S. 120–122
- [82] NAZMOV, V. ; REZNIKOVA, E. ; SOMOGYI, A. ; MOHR, J. ; SAILE, V.: Planar sets of cross x-ray refractive lenses from SU-8 polymer. In: *Proceedings of SPIE* 5539 (2004), S. 235–243
- [83] NIEMANN, B. ; RUDOLPH, D. ; SCHMAHL, G.: Soft X-ray imaging zone plates with large zone numbers for microscopic and spectroscopic applications. In: *Opt. Commun.* 12 (1974), S. 160–163
- [84] PEUKER, M.: *Elektronenstrahlolithographie und Nanostrukturübertragung zur Herstellung von hochauflösenden diffraktiven Röntgenoptiken aus Nickel*, Universität Göttingen, Dissertation, 2000
- [85] PEUKER, M.: High-efficiency nickel phase zone plates with 20 nm minimum outermost zone width. In: *Appl. Phys. Lett.* 78 (2001), S. 2208–2210
- [86] PFEIFFER, F. ; DAVID, C. ; BURGHAMMER, M. ; RIEKEL, C. ; SALDITT, T.: Two-Dimensional X-ray Waveguides and Point Sources. In: *Science* 297 (2002), S. 230–234
- [87] RAICHOUDHURY, P.: *Microlithography, Micromachining and Microfabrication*. SPIE Press, Bellingham, 1997
- [88] REHBEIN, S. ; GUTTMANN, P. ; WERNER, S. ; SCHNEIDER, G.: Development of chemical-mechanical polished high-resolution zone plates. In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 25 (2007), S. 1789–1793
- [89] REHBEIN, S. ; HEIM, S. ; GUTTMANN, P. ; WERNER, S. ; SCHNEIDER, G.: Ultrahigh-resolution soft-x-ray microscopy with zone plates in high orders of diffraction. In: *Phys. Rev. Lett.* 103 (2009), S. 110801
- [90] REHBEIN, S. ; SCHNEIDER, G.: Volume Zone Plate Development at BESSY. In: *IPAP Conference Series* 7 (2006), S. 103–106
- [91] RODENBURG, J. M. ; HURST, A. C. ; CULLIS, A. G. ; DOBSON, B. R. ; PFEIFFER, F. ; BUNK, O. ; DAVID, C. ; JEFIMOV, K. ; JOHNSON, I.: Hard-X-Ray Lensless Imaging of Extended Objects. In: *Phys. Rev. Lett.* 98 (2007), S. 034801
- [92] ROMANKIW, L. T.: *Plating Techniques*. In: RAICHOUDHURY [87], 1997
- [93] RUDOLPH, D. ; NIEMANN, B. ; SCHMAHL, G.: Status of the sputtered sliced zone plates for x-ray microscopy. In: *Proceedings of SPIE* 316 (1981), S. 103–105

- [94] RUDOLPH, D. ; SCHMAHL, G. ; NIEMANN, B. ; DIEHL, M. ; THIEME, J. ; WILHEIN, T. ; DAVID, C. ; MICHELMANN, K.: Wet Specimens Imaging with an X-ray Microscope with a Pulsed Plasma Source. In: *X-Ray Microscopy IV* (1994), S. 381–386
- [95] SCHLESINGER, M. ; PAUNOVIC, M.: *Modern Electroplating*. John Wiley and Sons, New York, 2000
- [96] SCHLIEBE, T.: *Erzeugung von Nanostrukturen aus Nickel für hochauflösende Röntgenoptiken mit hohem Beugungswirkungsgrad*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 1994
- [97] SCHLIEBE, T. ; SCHNEIDER, G. ; ASCHOFF, H.: Nanostructuring High Resolution Phase Zone Plates in Nickel and Germanium using Cross-Linked Polymers. In: *Microelectronic Engineering* 30 (1996), S. 513–516
- [98] SCHMAHL, G.: *Röntgenoptik*. In: BERGMANN und SCHÄFER [12], 1993
- [99] SCHMAHL, G. ; RUDOLPH, D. ; NIEMANN, B. ; CHRIST, O.: Zone plate X-ray microscopy. In: *Quarterly Reviews of Biophysics* 13 (1980), S. 297–315
- [100] SCHMAHL, G. ; RUDOLPH, D. ; SCHNEIDER, G. ; THIEME, J. ; SCHLIEBE, T. ; KAULICH, B. ; HETTWER, M.: Diffraction optics for X-ray imaging. In: *Microelectronic Engineering* 32 (1996), S. 351–367
- [101] SCHNEIDER, G.: Zone plates with high efficiency in high orders of diffraction described by dynamical theory. In: *Appl. Phys. Lett.* 71 (1997), S. 2242–2244
- [102] SCHNEIDER, G.: Influence of roughness and interdiffusion in zone plate structures on the diffraction efficiency described by coupled wave theory. In: *Appl. Phys. Lett.* 73 (1998), S. 599–601
- [103] SCHNEIDER, G.: *X-ray Microscopy of radiation sensitive material*, Universität Göttingen, Habilitationsschrift, 1999
- [104] SCHNEIDER, G. ; DENBEAUX, G. ; ANDERSON, E. ; BATES, W. ; SALMASSI, F. ; NACHIMUTHU, P. ; PEARSON, A. ; RICHARDSON, D. ; HAMBACH, D. ; HOFFMANN, N. ; HASSE, W. ; HOFFMANN, K.: Electromigration in integrated circuit interconnects studied by X-ray microscopy. In: *Nucl. Instr. and Meth. B* 199 (2003), S. 469–474
- [105] SCHNEIDER, G. ; GUTTMANN, P. ; HEIM, S. ; REHBEIN, S. ; EICHERT, D. ; NIEMANN, B.: X-Ray Microscopy at BESSY: From Nano-Tomography to Fs-Imaging. In: *AIP Conf. Proc.* 879 (2007), S. 1291–1294
- [106] SCHNEIDER, G. ; GUTTMANN, P. ; HEIM, S. ; REHBEIN, S. ; MUELLER, F. ; NAGASHIMA, K. ; HEYMANN, J. B. ; MÜLLER, W. G. ; MCNALLY, J. G.: 3D cellular fine structure resolved by a partially-coherent x-ray microscope. In: *Nature Methods* submitted (2010)

- [107] SCHNEIDER, G. ; HAMBACH, D. ; NIEMANN, B. ; KAULICH, B. ; SUSINI, J. ; HOFFMANN, N. ; HASSE, W.: In situ x-ray microscopic observation of the electromigration in passivated Cu interconnects. In: *Appl. Phys. Lett.* 78 (2001), S. 1936–1938
- [108] SCHNEIDER, G. ; MEYER, M. A. ; DENBEAUX, G. ; ANDERSON, E. ; BATES, B. ; PEARSON, A. ; KNÖCHEL, C. ; HAMBACH, D. ; STACH, E. A. ; ZSCHECH, E.: Electromigration in passivated Cu interconnects studied by transmission x-ray microscopy. In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 20 (2002), S. 3089–3094
- [109] SCHNEIDER, G. ; REHBEIN, S. ; WERNER, S.: *Volume Effects in Zone Plates*. In: ERKO, IDIR, KRIST and MICHETTE [29], 2008
- [110] SCHNEIDER, G. ; SCHLIEBE, T. ; ASCHOFF, H.: Cross-linked polymers for nanofabrication of high-resolution zone plates in nickel and germanium. In: *J. Vac. Sci. Technol.* 13 (1995), S. 2809–2812
- [111] SCHROER, C. G. ; BOYE, P. ; FELDKAMP, J. ; PATOMMEL, J. ; SCHROPP, A. ; SCHWAB, A. ; STEPHAN, S. ; BURGHAMMER, M. ; SCHÖDER, S. ; RIEKEL, C.: Coherent X-Ray Diffraction Imaging with Nanofocused Illumination. In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), S. 090801
- [112] SCHROER, C. G. ; KURAPOVA, O. ; PATOMMEL, J. ; BOYE, P. ; FELDKAMP, J. ; LENGELER, B. ; BURGHAMMER, M. ; RIEKEL, C. ; VINCZE, L. ; HART, A. van d. ; KÜCHLER, M.: Hard x-ray nanoprobe based on refractive x-ray lenses. In: *Appl. Phys. Lett.* 87 (2005), S. 124103
- [113] SHAPIRO, D. ; THIBAUT, P. ; BEETZ, T. ; ELSE, V. ; HOWELLS, M. ; JACOBSEN, C. ; KIRZ, J. ; LIMA, E. ; MIAO, H. ; NEIMAN, A. M. ; SAYRE, D.: Biological imaging by soft x-ray diffraction microscopy. In: *PNAS* 102 (2005), S. 15343–15346
- [114] SNIGIREV, A. ; BJEUMIKHOV, A. ; ERKO, A. ; SNIGIREVA, I. ; GRIGORIEV, M. ; YUNKIN, V. ; ERKO, M. ; BJEUMIKHOVA, S.: Two-step hard X-ray focusing combining Fresnel zone plate and single-bounce ellipsoidal capillary. In: *J. Synchrotron. Rad.* 14 (2007), S. 326–330
- [115] SNIGIREV, A. ; KOHN, V. ; SNIGIREVA, I. ; LENGELER, B.: A compound refractive lens for focusing high-energy X-rays. In: *Nature* 384 (1996), S. 49–51
- [116] SNIGIREV, A. ; KOHN, V. ; SNIGIREVA, I. ; SOUVOROV, A. ; LENGELER, B.: Focusing High-Energy X-Rays by Compound Refractive Lenses. In: *Appl. Opt.* 37 (1998), S. 653–662
- [117] SNIGIREV, A. ; SNIGIREVA, I.: *Hard X-Ray Microoptics*. In: ERKO, IDIR, KRIST and MICHETTE [29], 2008
- [118] SORET, J.: Über die durch Kreisgitter erzeugten Diffraktionsphänomene. In: *Annalen der Physik und Chemie* 156 (1875), S. 99–113

- [119] SPILLER, E.: *Soft X-ray Optics*. SPIE The International Society of Optical Engineering, Bellingham, 1994
- [120] STADLER, L. M. ; GUTT, C. ; AUTENRIETH, T. ; LEUPOLD, O. ; REHBEIN, S. ; CHUSHKIN, Y. ; GRÜBEL, G.: Hard X Ray Holographic Diffraction Imaging. In: *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008), S. 245503
- [121] STIGLIANI, D. J. ; MITTRA, R. ; SEMONIN, R. G.: Resolving Power of a Zone Plate. In: *J. Opt. Soc. Am.* 57 (1967), S. 610–613
- [122] TAMIR, T. ; WANG, H. C. ; OLINER, A. A.: Wave Propagation in Sinusoidally Stratified Dielectric Media. In: *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* 12 (1964), S. 323–335
- [123] THIBAUT, P. ; DIEROLF, M. ; MENZEL, A. ; BUNK, O. ; DAVID, C. ; PFEIFFER, F.: High-Resolution Scanning X-ray Diffraction Microscopy. In: *Science* 321 (2008), S. 379–382
- [124] UNDERWOOD, J. H. ; THOMPSON, A. C. ; WU, Y. ; GIAUQUE, R. D.: X-Ray Microprobe Using Multilayer Mirrors. In: *Nucl. Instr. and Meth. A* 266 (1988), S. 296–302
- [125] VLADIMIRSKY, Y. ; KOOPS, H. W. P.: Resolving Power of a Zone Plate. In: *J. Vac. Sci. Technol. B* 6 (1988), S. 2142–2146
- [126] WEISS, D.: *Optimierung der Kunststoffform bei der galvanischen Herstellung von Mikrozonplatten aus Nickel*, Universität Göttingen, Diplomarbeit, 1997
- [127] WEISS, D.: *Computed tomography based on cryo X-ray microscopic images of unsectioned biological specimens*, Universität Göttingen, Dissertation, 2000
- [128] WEISS, D. ; PEUKER, M. ; SCHNEIDER, G.: Radiation-enhanced network formation in copolymer galvanofoms for diffractive nickel x-ray optics with high aspect ratios. In: *Appl. Phys. Lett.* 72 (1998), S. 1805–1807
- [129] WERNER, S. ; REHBEIN, S. ; GUTTMANN, P. ; HEIM, S. ; SCHNEIDER, G.: Towards stacked zone plates. In: *Journal of Physics: Conference Series* 186 (2009), S. 012079–012081
- [130] WERNER, S. ; REHBEIN, S. ; GUTTMANN, P. ; HEIM, S. ; SCHNEIDER, G.: Towards high diffraction efficiency zone plates for X-ray microscopy. In: *Microelectron. Eng.* 87 (2010), S. 1557–1560
- [131] WOLTER, H.: Spiegelsysteme streifenden Einfalls als abbildende Optiken für Röntgenstrahlen. In: *Ann. der Physik* 10 (1952), S. 94–114
- [132] YAN, H. ; KANG, H. C. ; MASER, J. ; T., Macrander A. ; KEWISH, C. M. ; LIU, C. ; CONLEY, R. ; STEPHENSON, G. B.: Characterization of a multilayer Laue lens with imperfections. In: *Nucl. Instr. and Meth. A* 582 (2007), S. 126–128

- [133] ZSCHECH, E. ; HUEBNER, R. ; CHUMAKOV, D. ; AUBEL, O. ; FRIEDRICH, D. ; GUTTMANN, P. ; HEIM, S. ; SCHNEIDER, G.: Stress-induced phenomena in nano-sized copper interconnect structures studied by x-ray and electron microscopy. In: *J. Appl. Phys.* 106 (2009), S. 093711



# Selbständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, die Dissertation selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfen und Hilfsmittel angefertigt zu haben.

Ich hab mich anderwärts nicht um einen Doktorgrad beworben und besitze einen entsprechenden Doktorgrad nicht.

Ich erkläre die Kenntnisnahme der dem Verfahren zugrunde liegenden Promotionsordnung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I der Humboldt-Universität zu Berlin vom 01. September 2005.

Berlin, den 06.05.2010

Stephan Werner